



DECKBLATT

	Projekt	PSP-Element	Obj. Kenn.	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.
	N A A N	NNNNNNNNNN	NNNNNN	X A A X X	A A	NNNN	NN
EU 125.3	9K		---	HF	RB	0004	00

Titel der Unterlage:

Sorption und Ausbreitung von Radionukliden
in zwei Ackerböden der Bundesrepublik Deutschland
GSF-S-1071

Seite:

I.

Stand:

Aug. 1984

Ersteller:

GSF

Textnummer:

Stempelfeld:

PSP-Element TP...9K/212856

zu Plan-Kapitel: 3.9.6

Freigabe für Behörden

Freigabe im Projekt

Diese Unterlage unterliegt samt Inhalt dem Schutz des Urheberrechts sowie der Pflicht zur vertraulichen Behandlung auch bei Beförderung und Vernichtung und darf vom Empfänger nur auftragsbezogen genutzt, vervielfältigt und Dritten zugänglich gemacht werden. Eine andere Verwendung und Weitergabe bedarf der ausdrücklichen Zustimmung der PTB.

GESELLSCHAFT FÜR STRAHLEN- UND UMWELTFORSCHUNG MBH MÜNCHEN
Institut für Strahlenschutz

Sorption und Ausbreitung von Radionukliden
in zwei Ackerböden der Bundesrepublik Deutschland*

von



Neuherberg, August 1984

GSF-Bericht S-1071

ISSN 721-1694

*) Die Untersuchungen wurden im Rahmen eines vom Bundesministerium für
Forschung und Technologie geförderten Forschungsprojekts "Sicherheits-
studien Entsorgung" (PSE) durchgeführt.

INHALTSVERZEICHNIS

	Seite
Zusammenfassung	I
1. Einleitung und Aufgabenstellung	1
2. Grundlagen	3
3. Untersuchte Böden	6
3.1 Auswahl	6
3.2 Probenahme	6
3.3 Charakterisierung der Böden	8
3.3.1 Profilbeschreibung	8
3.3.2 Physikalisch-chemische Daten	10
4. Methoden	13
4.1 Radionuklide	13
4.2 Sorptionsmessungen	14
4.2.1 Probenvorbereitung	14
4.2.2 Herstellung der Bodenlösung	14
4.2.3 Bestimmung des Verteilungskoeffizienten K_d	15
4.2.4 Kinetik der Sorption und Desorption	17
4.2.5 Abhängigkeit des K_d -Wertes von der Kalium- und Kalziumkonzentration der Bodenlösung	18
4.3 Säulenversuche	18
4.3.1 Die Säulenanlage	18
4.3.2 Aufbringen der Radionuklide	19
4.3.3 Scanner und Meßtechnik	20
4.3.4 Meß- und Auswertverfahren	20
4.3.4.1 Meßprinzip	20
4.3.4.2 Berechnung der Retardationsfaktoren	23
4.4 Fehlerbetrachtung	25
4.4.1 Batch-Versuche	25
4.4.1.1 Sorptionsversuche	25
4.4.1.2 Desorption	27
4.4.2 Säulenversuche	29
4.4.2.1 Meßfehler der Nuklidaktivitäten in den Säulen	29
4.4.2.2 Fehler der Retardationsfaktoren R_d	30

	Seite
5. Ergebnisse und Diskussion	32
5.1 Sorptionsmessungen (Batch-Versuche)	32
5.1.1 Kinetik der Sorption und Desorption	32
5.1.2 Verteilungskoeffizienten nach dem Standardverfahren	46
5.1.3 Einfluß von Kalium- und Kalziumionen in der Bodenlösung auf den Verteilungskoeffizienten	51
5.2 Säulenversuche	54
5.2.1 Hydrodynamische Kenngrößen der Bodensäulen	54
5.2.2 Die Retardationsfaktoren	58
6. Vergleich der K_d -Werte aus Sorptions- und Säulenversuchen	69
7. Vergleich der K_d -Werte für verschiedene Böden	72
8. Schlußfolgerungen	76
9. Literatur	78

ZUSAMMENFASSUNG

Bei Stör- und Unfällen an kerntechnischen Anlagen können Radionuklide freigesetzt werden und über die Luft auf die Oberfläche landwirtschaftlich genutzter Böden in der Umgebung gelangen. Ziel der vorliegenden Untersuchung war es, die vertikale Ausbreitungsgeschwindigkeit verschiedener Radionuklide in den einzelnen Horizonten von Ackerböden experimentell zu ermitteln. Die hierbei erhaltenen Aussagen über die Verweildauer von Radionukliden in der Wurzelzone eines Bodens ermöglichen letztlich eine realistische Abschätzung der langfristigen Strahlenexposition der Bevölkerung durch Radionuklide, die über den Boden-Nahrungsmittelpfad aufgenommen werden.

Für die Untersuchungen wurden zwei Ackerböden ausgewählt, eine Parabraunerde und eine Auenrendzina, für die bereits von anderen Arbeitsgruppen Transferfaktoren einiger Radionuklide für den Übergang Boden-Pflanze gemessen wurden. Beide Böden wiesen bis zu einer Tiefe von 1 m sechs verschiedene Horizonte auf.

Zur Bestimmung der Ausbreitungsgeschwindigkeit der Radionuklide von Cs, Sr, Ce, Ru, I und Tc wurden folgende 2 Verfahren angewandt:

- 1) Bestimmung der Sorptionseigenschaften (charakterisiert durch die Verteilungskoeffizienten K_d) der Bodenproben aus den einzelnen Horizonten gegenüber den obigen Radionukliden mit Hilfe eines gegenüber früher verbesserten Batch-Verfahrens (Schüttelversuche). Dabei wurde auch die Kinetik der Sorption und Desorption der Nuklide in den einzelnen Bodenhorizonten über einen Zeitraum von mehreren Monaten untersucht. Um den Einfluß einer mineralischen Düngung auf die K_d -Werte der einzelnen Radionuklide zu erfassen, wurden auch die Sorptionseigenschaften der A_p -Horizonte der Böden als Funktion der Kalium- und Kalziumkonzentration der Bodenlösung bestimmt. Mit Hilfe dieser Verteilungskoeffizienten lassen sich unter bestimmten Voraussetzungen Ausbreitungsgeschwindigkeiten der Radionuklide im Boden berechnen.
- 2) Direkte Messung der Ausbreitungsgeschwindigkeit der Radionuklide in Säulenversuchen. Hierbei wurden von jedem Boden mehrere ca. 1 m lange Bodenmonolithe ungestört ausgestochen, ins Labor transportiert und in

periodischen Abständen künstlich berechnet. Die hydraulischen Eigenschaften der Bodensäulen (Sickerwassergeschwindigkeit, Wassergehalt, Dispersionskoeffizient) wurden durch Verwendung von Tritium-markierten Regenwasser bestimmt. Anschließend wurden die Radionuklide auf die Oberfläche der Säulen aufgebracht und ihre vertikale Ausbreitung unter dem Einfluß einer weitgehend natürlichen Beregnung periodisch mittels eines Gammastrahlen-Scanners von außen 1 - 2 Jahre lang verfolgt. Aus der Tiefenverteilung der Radionuklide im Boden wurden mit Hilfe eines numerischen Mehrschichten-Ausbreitungsmodells und eines Großrechners die Wanderungsgeschwindigkeiten durch sogenannte Retardationsfaktoren R_d (Verzögerung gegenüber dem Sickerwasser) beschrieben.

Die Batch-Versuche zeigten, daß sich unter unseren experimentellen Bedingungen für alle Nuklide und alle Bodenhorizonte das Sorptionsgleichgewicht nach 20 Tagen (mit Ausnahme von J) weitgehend eingestellt hatte. Die aus den Gleichgewichtszuständen ermittelten Verteilungskoeffizienten nahmen für die meisten Bodenhorizonte in der Reihenfolge

$$\text{Te} < \text{J} < \text{Sr} < \text{Ru} < \text{Cs} \approx \text{Ce}$$

zu, wobei die K_d -Werte je nach Bodenhorizont innerhalb folgender Grenzen lagen (Werte in cm^3/g):

Tc: 0,05 - 0,7	J: 0,1 - 32	Sr: 1,3 - 32
Ru: 90 - 3500	Cs: 2800 - 90000	Ce: 2400 - 81000.

Die Kinetik der Desorption der Radionuklide vom Boden durch eine frische inaktive Bodenlösung wurde bis zu einem Zeitraum von 180 Tagen verfolgt. Dabei wurde das Desorptionsverhalten eines Nuklids durch Angabe des Verhältnisses $q = K'_{d,desorption} / K_{d,sorption}$, das für einen reversiblen Sorptionsprozeß gleich 1 ist, charakterisiert. Für mehrere Radionuklide wurden in den verschiedenen Bodenhorizonten tatsächlich Werte für $q = 1$ nach 180 oder weniger Tagen beobachtet. In anderen Horizonten wurden jedoch auch Werte für q von größer oder kleiner als 1 nach 180 Tagen gefunden, wobei jedoch selbst nach diesem Zeitraum noch nicht immer ein Gleichgewicht erreicht war. Zwar sind derart lange Versuchszeiten wegen der meist sehr

langsamen Desorption der Nuklide notwendig, doch ist es fraglich, ob hierbei noch realistische K_d -Werte erhalten werden. Lösungserscheinungen einzelner Bodenkomponenten, aber auch Kolloidbildungen (z.B. von Huminsubstanzen) sind hierbei nicht auszuschließen, die zu erheblichen Verfälschungen der K_d -Werte führen können. Nicht zuletzt ist dies die Folge eines aus experimentellen Gründen beim Batch-Verfahren notwendigen, relativ hohen Verhältnisses Lösung zu Boden, wie es in der Natur nicht auftritt.

Erhöht man in der Bodenlösung die Konzentration von Kaliumnitrat, so nehmen in beiden Ackerböden insbesondere die K_d -Werte von Cs und Sr ab, während diejenigen der anderen untersuchten Nuklide sich kaum verändern. Eine Zugabe von Kalziumnitrat zur Bodenlösung erniedrigt bei beiden Böden sehr stark die K_d -Werte von Sr und deutlich auch diejenigen von Ce und Cs, hat aber wenig Einfluß auf die Sorption von Ru, Tc und J. Bei einer mineralischen Düngung des Bodens wird man also mit einer Erhöhung der Ausbreitungsgeschwindigkeit von Cs, Sr und Ce rechnen müssen.

Die Bestimmung der hydrodynamischen Eigenschaften der Bodensäulen mit Tritium-markiertem Wasser ergab für beide Ackerböden Abstandsgeschwindigkeiten des Sickerwassers zwischen $2,7$ und $5,6 \cdot 10^{-8}$ m/s, Dispersionskoeffizienten zwischen $2,1$ und $4,1 \cdot 10^{-9}$ m²/s und Dispersionslängen zwischen $0,04$ und $0,11$ m. Die Wassergehalte lagen bei $0,34 - 0,40$ m³/m³. Mit Ausnahme von Tc erfolgte die Ausbreitung der Radionuklide sehr langsam, so daß am Ende des Versuchszeitraums von ca. 2 Jahren die Radionuklide sich noch im A_p -Horizont (0 - 30 cm Tiefe) befanden. Die höchsten Retardationsfaktoren (geringste Wanderungsgeschwindigkeit) wurden für Cs, Ce und Ru gefunden ($R_d > 4000$), deutlich niedrigere für Sr ($R_d = 900 - 1300$). Bei Technetium wurde eine langsame Fraktion, die sich im A_p -Horizont der beiden Böden mit einem R_d -Wert von $10 - 50$ ausbreitete, beobachtet, sowie eine schnelle Fraktion, die nahezu mit derselben Geschwindigkeit wie das Sickerwasser ($R_d = 1 - 4$) durch die gesamte Säule wanderte. Während bei dieser Fraktion vermutlich Tc noch, wie angegeben, als TcO_4^- vorlag, dürfte es sich bei der langsamen Fraktion um ein positiv geladenes Reduktionsprodukt des Tc handeln, das unter den teilweise anaeroben Verhältnissen im Boden gebildet und daher sorbiert wird. Für alle untersuchten Radionuklide konnte die Ausbreitung im Boden mit dem von uns verwendeten Modell, unabhängig von

der Versuchsdauer befriedigend beschrieben werden. Dies zeigt, daß für diese Radionuklide in den beiden Böden das K_d - bzw. R_d -Konzept angewandt werden darf und daß die Sorption reversibel verläuft.

Berechnet man aus den bei den Säulenversuchen erhaltenen R_d -Werten die entsprechenden K_d -Werte für die einzelnen Nuklide und vergleicht diese mit den entsprechenden Werten, die nach dem Batch-Verfahren erhalten wurden, so findet man erhebliche Differenzen. Dabei liegen die K_d -Werte für Cs und Ce nach dem Batch-Verfahren im A_p -Horizont für beide Böden über denjenigen nach dem Säulenverfahren, während für Sr, Ru und Tc das umgekehrte Verhalten beobachtet wird. Der beobachtete Unterschied beträgt meist etwa eine Größenordnung und ist am größten für Tc, bei dem mit dem Batch-Verfahren (das unter aeroben Verhältnissen durchgeführt wurde) offensichtlich nur die schnelle Fraktion (TcO_4^-) erfaßt wird. Für Jod konnten mangels eines geeigneten langlebigen Nuklids mit harter Gammastrahlung keine Säulenversuche durchgeführt werden, so daß die oben angegebenen K_d -Werte nach dem Batch-Verfahren nicht überprüft werden können und daher nur mit Vorbehalt anzusehen sind. Von diesen Ausnahmen abgesehen ergeben jedoch die Batch- und Säulenversuche im wesentlichen qualitativ das gleiche Bild.

Vergleicht man die hier für die beiden Ackerböden (Parabraunerde und Auenrendzina) gefundenen K_d -Werte mit den bereits früher (im Rahmen des Projektes PSE I) an anderen Böden (Braunerde, Ranker, Podsol) gefundenen Werten, so fällt auf, daß bei den letzteren Böden die K_d -Werte für Cs und Sr erheblich niedriger sind. Dies ist vermutlich auf die relativ hohen pH-Werte in den beiden Ackerböden zurückzuführen.

1. Einleitung und Aufgabenstellung

Radionuklide, die von kerntechnischen Anlagen im Normalbetrieb oder bei Störfällen an die Atmosphäre abgegeben werden, gelangen überwiegend durch nassen oder trockenen Fallout auf die Oberfläche von Bewuchs und Boden. Dabei kann der Anteil der Radionuklide, der direkt an der Pflanzenoberfläche abgeschieden wird, bereits nach relativ kurzer Zeit in der Nahrungsmittelkette des Menschen zu finden sein ([REDACTED] et al. 1982). Wann die auf dem Boden deponierten Radionuklide in die Nahrung kommen, hängt neben der Größe der Transferfaktoren Boden-Pflanze langfristig aus folgenden Gründen auch von der vertikalen Ausbreitungsgeschwindigkeit der Nuklide in dem betreffenden Boden ab: Erstens kontrolliert diese die Verweildauer der Radionuklide in der Oberflächenschicht des Bodens (0 - 1 cm), von der aus sie durch Resuspension oder Runoffprozesse weiter transportiert werden können. Zweitens wird durch sie auch die Zeitspanne bestimmt, innerhalb derer sich die Radionuklide in der Wurzelzone der Pflanze befinden und damit von den Pflanzen aufgenommen werden können. Schließlich wird auch die Zeit, nach der die Radionuklide die wasserungesättigte Bodenzone durchwandert haben und damit in das Grundwasser und damit häufig auch in das Trinkwasser gelangen, entscheidend von der Wanderungsgeschwindigkeit abhängen.

Während wir im ersten Teil des Projekts "Sicherheitsstudien Entsorgung" (PSE I) überwiegend die Ausbreitung von Radionukliden in einigen ungestörten Böden (Podsol, Ranker, Braunerde) bestimmten, lag der Schwerpunkt dieser Arbeit bei der Untersuchung der Sorption und Ausbreitung von Radionukliden in Ackerböden. Dabei wurden wieder zwei häufig in Deutschland vorkommende Bodentypen ausgewählt: Eine Parabraunerde und eine Auenrendzina. Beide Böden wiesen jeweils 6 verschiedene Horizonte mit unterschiedlichen physikalisch-chemischen Eigenschaften auf. Da zu erwarten ist, daß auch die Ausbreitungsgeschwindigkeit der einzelnen Nuklide in diesen Horizonten verschieden ist, wurden deren Sorptionseigenschaften jeweils getrennt bestimmt. Dabei wurden folgende Nuklide verwendet: Cs-137, Sr-85, J-131, J-125, Tc-95m, Ru-103, Ru-106, Ce-139 und Ce-141.

Ziel der Untersuchungen war es, das Ausmaß der Sorption der einzelnen Radionuklide in den verschiedenen Bodenhorizonten durch ein möglichst realistisches Batch-Verfahren zu ermitteln und, soweit möglich, die hierbei erhaltenen Aussagen durch direkte Messung der Ausbreitungsgeschwindigkeit in großen, ungestört entnommenen Bodensäulen zu überprüfen. Ferner sollte der Einfluß von mineralischen Düngemitteln auf die Sorption der Radionuklide im Boden untersucht werden. Schließlich erschien es sinnvoll, die für die beiden Ackerböden erhaltenen Ergebnisse mit den früher von uns an anderen Bodentypen erhaltenen Ergebnisse zu vergleichen, um zu sehen, inwieweit jetzt schon allgemeine Schlüsse aus den bisherigen Untersuchungen gezogen werden können und inwieweit jeweils standortspezifische Messungen der Ausbreitungsgeschwindigkeit von Nukliden notwendig sind.

2. Grundlagen

Für die experimentelle Bestimmung der Wanderungsgeschwindigkeit eines Radionuklids im Boden bieten sich im wesentlichen 3 verschiedene Methoden an (

Bei der ersten Methode wird in einem Gleichgewichtsexperiment die Sorption des Radionuklids durch eine bekannte Menge Boden in einem Schüttelversuch (Batch-Verfahren) mit der Bodenlösung, die das Nuklid enthält, gemessen. Aus einem derartigen Sorptionsexperiment, dessen Gleichgewichtseinstellung sehr lange dauern kann und durch begleitende kinetische Untersuchungen verfolgt werden muß, erhält man zunächst den Verteilungskoeffizienten K_d des Radionuklids RN als

$$K_d \text{ (cm}^3\text{/g)} = \frac{\text{Aktivität des RN/g Boden}}{\text{Aktivität des RN/cm}^3 \text{ Bodenlösung}} \quad (2.1)$$

Für reversible Sorptionsprozesse, die schnell gegenüber der Wanderungsgeschwindigkeit des Radionuklids im Boden verlaufen, ist der K_d -Wert eng mit dem Retardationsfaktor R_d , der die Verzögerung der Nuklidgeschwindigkeit gegenüber der Sickerwassergeschwindigkeit im Boden angibt, verknüpft. Dabei gilt:

$$R_d = \frac{\text{Sickerwassergeschwindigkeit}}{\text{Transportgeschwindigkeit des RN}} = 1 + \frac{\rho}{\theta} \cdot K_d \quad (2.2)$$

wobei ρ die Dichte und θ den Wassergehalt des Bodens bedeuten.

Unter gewissen Voraussetzungen läßt sich also nach Gl. (2.2) aus dem Verteilungskoeffizienten die eigentlich interessierende Größe, nämlich der Retardationsfaktor, berechnen. Der Vorteil des Batch-Verfahrens ist seine große Einfachheit bei der Versuchsdurchführung; der Nachteil, daß man mit einem einzigen Gleichgewichtsexperiment einen letztlich dynamischen Vorgang zu beschreiben versucht. Trotzdem wird dieses Verfahren heute häufig angewandt.

Wesentlich realitätsnäher sind Säulenversuche, bei denen in möglichst großen ungestörten Bodenmonolithen die Ausbreitung eines Radionuklids mittels eines Gammastrahlen-Scanners von außen laufend verfolgt werden kann. Diese Versuche sind zwar wegen der sehr langsamen Ausbreitungsgeschwindigkeit für die meisten Nuklide sehr zeitaufwendig (mehrere Jahre), haben aber den weiteren Vorteil, daß die in Gl. (2.2) auftretende Sickerwassergeschwindigkeit durch Markierung des Wassers mit Tritium ebenfalls mit der gleichen Versuchsanordnung direkt gemessen werden kann. Außerdem läßt sich bei diesem Verfahren der in der Natur vorherrschende, in bezug auf den Wassergehalt ungesättigte Zustand des Bodens durch eine periodische künstliche Beregnung der Bodenoberfläche im Labor aufrechterhalten. Durch direkte Messung sowohl der Sickerwassergeschwindigkeit als auch des Tiefenprofils des Radionuklids im Boden als Funktion der Zeit erhält man hierbei den Retardationsfaktor.

Bei Verwendung von ungestörten Bodenmonolithen in den Säulen läßt sich auch die unterschiedliche Wanderungsgeschwindigkeit des Radionuklids in den einzelnen Bodenhorizonten bestimmen, da das Radionuklid diese Schichten nacheinander durchwandert. Zur Ermittlung der Transportgeschwindigkeit des Radionuklids aus dem experimentell mit einem Scanner gemessenen Tiefenprofil der Aktivität als Funktion der Zeit benötigt man in diesem Fall jedoch ein relativ aufwendiges Transportmodell ([REDACTED] et al. 1974), dessen Anwendung im allgemeinen auch die Verfügbarkeit eines Großrechners zur Voraussetzung hat.

Für einige langlebige Radionuklide (Cs-137, Sr-90, Pu-239/240), die mit dem globalen Fallout früherer Kernwaffentests auf die Bodenoberfläche gelangt sind, bietet sich noch eine dritte, sehr realitätsnahe Methode an. Hier werden zunächst im Feld Bodenproben im Abstand von wenigen Zentimetern von der Bodenoberfläche entnommen und darin die Konzentration von z.B. Cs-137 bestimmt. Mit Hilfe des hierbei gewonnenen Tiefenprofils der Aktivität dieses Radionuklids läßt sich ebenfalls die Wanderungsgeschwindigkeit von Cs-137 abschätzen. Der große Vorteil dieser Methode ist, daß sich hierbei das Radionuklid unter idealen natürlichen Bedingungen während vieler Jahre im Boden ausgebreitet hat. Andererseits benötigt man für die Auswertung des Tiefenprofils wieder ein Transportmodell und einen Großrechner, da die Aus-

breitung in einem inhomogenen, geschichteten Medium erfolgt; zusätzlich benötigt man noch Angaben über den zeitlichen Verlauf, nachdem das Radionuklid auf die Bodenoberfläche gelangt ist, sowie der Sickerwassergeschwindigkeit.

Über einen Vergleich von K_d -Werten, die nach diesen 3 Verfahren an denselben Böden bestimmt wurden, haben wir bereits früher berichtet ([REDACTED] et al. 1982). Im folgenden wurden die Verteilungskoeffizienten für alle Bodenhorizonte nach dem Batch-Verfahren bestimmt. R_d -Werte nach dem Säulenverfahren wurden ebenfalls bestimmt, ergaben jedoch wegen der relativ langsamen Ausbreitung der meisten Radionuklide innerhalb des bisherigen Untersuchungszeitraums (ca. 2 Jahre) nur K_d -Werte in dem obersten Bodenhorizont (A_p), der allerdings für die Aufnahme der Radionuklide durch die Pflanzenwurzeln auch der wichtigste ist.

3. Untersuchte Böden

3.1 Auswahl

Die Auswahl der Böden erfolgte unter zwei Gesichtspunkten. Zum einen sollten es weitverbreitete Bodentypen der Bundesrepublik Deutschland sein, zum anderen sollten über sie möglichst viele Daten, insbesondere Transferfaktoren für den Übergang von Radionukliden aus dem Boden in Pflanzen vorliegen. In Zusammenarbeit mit [REDACTED] und [REDACTED] vom Institut für Radioagronomie der KFA-Jülich sowie mit dem PSE-Projektkomitee wurden zwei Ackerböden ausgewählt, eine Parabraunerde aus Löß in Eschweiler-Lohn und eine Auenrendzina in der Nähe von Gernsheim, ca. 5 km vom Kernkraftwerk Biblis entfernt.

Für die Parabraunerde wurden im Institut für Radioagronomie der KFA-Jülich zahlreiche Transferfaktoren gemessen ([REDACTED] 1979). Über die Auenrendzina, ein für Flußtäler und damit kerntechnische Anlagen typischer Boden, liegen aufgrund der "Modellstudie Radioökologie Biblis" zahlreiche Daten vor, unter anderem auch Transferfaktoren für verschiedene Pflanzen (Der Hessische Minister für Wirtschaft und Verkehr 1981). Die Probenahmestelle ist ein Getreideacker, der in der Modellstudie als "Testfläche 14 des Umgebungsüberwachungsprogramms Biblis" ausgewiesen ist.

3.2 Probenahme

Das Ausstechen von Bodenmonolithen erfolgt zweckmäßig am besten im Herbst oder Frühjahr, wenn der Boden weitgehend wassergesättigt ist. Die Probenahme der Parabraunerde fand daher vom 9. - 12.11.1981 statt, diejenige der Auenrendzina vom 18. - 20.11.1982.

In beiden Fällen wurden für Säulenversuche je 6 PVC-Rohre - Durchmesser 30 cm, Länge ca. 100 cm - mit Hilfe eines Baggers langsam in den Boden eingepreßt und dann ausgehoben (siehe Abb. 3.2.1 und 3.2.2). Für Sorptionsversuche wurden von jedem Horizont 20 - 30 kg Material genommen, zur Bestimmung der Trockenraumdichten je Horizont drei Stechzylinderproben.

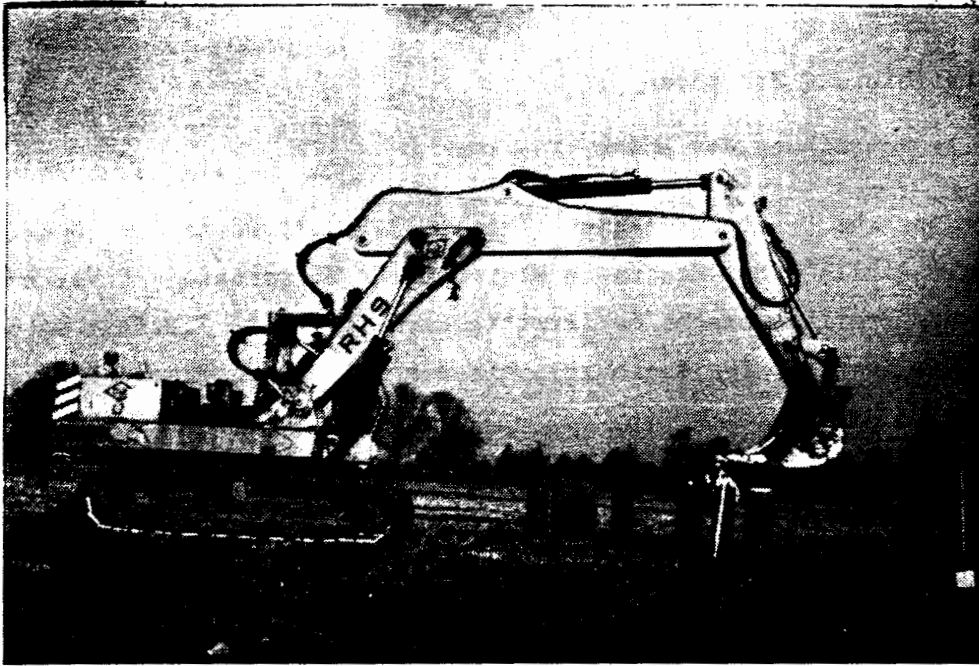


Abb. 3.2.1 Einpressen der Säulen



Abb. 3.2.2 Ausgraben der Säulen

3.3 Charakterisierung der Böden

3.3.1 Profilbeschreibung der Böden

Die Profilsprache der Auenrendzina (Tabelle 3.3.1.1) wurde der "Modellstudie Radioökologie Biblis" (Der Hessische Minister für Wirtschaft und Verkehr 1981) entnommen. Die Profilsprache der Parabraunerde (Tabelle 3.3.1.2) wurde von [REDACTED] vom Institut für Radioagronomie der KFA Jülich durchgeführt.

Tag der Aufnahme: 5.4.1973 Grundwasserflurabstand: über 200 cm Koordinaten des Aufschlusses: R 346077 H 550707 Geologie: Hochflutlehm des Rheins (ca. 90 cm) über umgelagerten Flug- sand (ca. 45 cm), darunter fluviatile Sand und Kiese Bodentyp: <u>Auenrendzina</u> aus jungen kalkhaltigen Flußsedimenten <u>mit</u> <u>A-C-G-Profil mit abgesenktem Grundwasser</u> Bodenprofil:			
Horizont- symbol	Mächtigkeit	geologisch-petrographische Beschaffenheit	Abkürzung
A _p	0 - 20 cm	sandiger Lehm, d'braun (10YR3/2), humos, mittel kalk- haltig	k, sL
C	20 - 31 cm	Lehm, kräftig mittelbraun (10YR3/2), schwach humos, mittel kalkhaltig	k, L
C _c	31 - 56 cm	lehmiger bis feinsandiger Schluff, kräftig mittelbraun (2,5YR4/2, unten 5/4), stark bis sehr stark kalkhaltig (Rhein- weiß in unregelmäßigen Konkretion- en angereichert	k-k, IU-sU
fG _r C _c	56 - 88 cm	lehmiger Schluff, graugelb (2,5YR5/4, unten 5Y6/4), nach unten immer stärker marmoriert, stark bis sehr stark kalkhal- tig (Rheinweiß in unregelmäßi- gen Konkretionen angereichert)	k-k, IU
IIIfG _r	88 -128 cm	Schluff, Feinsand und feinsan- diger Mittelsand im Wechsel, grau (5Y6/3), schwach marmo- riert, stark kalkhaltig	k, fS
IIIG _r	128 - 132 cm	feinsandiger Schluff, fahlgrau (5Y7/3) schwach kalkhaltig	k', sU
IVG _r	132 - 300 cm	Mittelsand bis Mittelkies, hell- grau (5Y8/2, unten 7/1), schwach kalkhaltig	k', mS-mG

Tabelle 3.3.1.1 Profilbeschreibung der Auenrendzina

Bodenprofil: Eschweiler-Lohn Probenahme: 10.11.1981

Bodentyp: Parabraunerde mit schwachen ehemaligen Grundwasser- oder Staunäseeinflüssen im Untergrund ab 88 cm

Allgemeine Angaben:

Ort: Eschweiler-Lohn
 Geländegestaltung: fast ebene Hochfläche
 Kulturart: Acker
 Bodenflora: Weizen
 Gestein: Löß
 Formation: Pleistozän
 Gründigkeit: tief
 Wasserverhältnisse: frisch, derzeitiger Grundwasserstand ca. 32 m

Tiefe/cm	Horizont	Bodenart	Horizontbeschreibung
0 - 31	A _p	hfsL	dunkelgraubrauner (10YR4/2), mäßig humuser feinsandiger Lehm, obere 10 cm stark plattiges Gefüge, sonst subpolyedrisches Gefüge (1-5 mm Ø), Regenwurmgänge, schwach durchwurzelt;
31 - 52	A ₁	fsL	dunkelgelblichbrauner (10YR4/4), sehr schwach humuser feinsandiger Lehm, subpolyedrisches Gefüge (1-5 mm), zerfällt unter leichtem Druck, viele Wurmgänge mit A _p -Material ausgekleidet, schwach durchwurzelt;
52 - 62	B _t A ₁	fs'L	dunkelgelbbrauner (10YR4/4), schwach feinsandiger Lehm mit diffus gelblichbraunen Aufhellzonen, subpolyedrisches Gefüge (1-10 mm), zerfällt unter mäßigem Druck, Wurmröhren, mit Humusmaterial bekleidet, Nadelstichporen, schwach durchwurzelt;
62 - 73	A ₁ B _t	L	dunkelgelbbrauner (10YR4/4-3/4) Lehm, diffus gelblichbraun aufgehellte Partien, polyedrisches Gefüge (5-25 mm), zerfällt unter mäßigem Druck, vereinzelt Wurmgänge, Nadelstichporen, schwach durchwurzelt;
73 - 88	B _t 1	t'L	dunkelbrauner (7,5YR4/4) schwach toniger Lehm, diffuse streng braune Partien (7,5YR5/6), prismatisches Gefüge (bis ca. 100 mm), unter mäßigem Druck im Polyeder (5-25 mm) zerlegbar, vereinzelt Wurmgänge, Nadelstichporen, ganz schwach durchwurzelt;
88 - 120+	B _t 2	t'L	dunkelbrauner (7,5YR4/4) schwach toniger Lehm, partienweise diffus gelblichbraun aufgehellte (10YR5/6), grob prismatisches Gefüge (ca. 100-150 mm) unter mäßigem Druck in Polyeder (5-30 mm) zerlegbar, vereinzelt Wurmgänge, ausgekleidet, Nadelstichporen, nur sehr feine Überzüge auf Gefügeflächen, sehr schwach durchwurzelt.

Tabelle 3.3.1.2 Profilbeschreibung der Parabraunerde

3.3.2 Physikalisch-chemische Daten

Die Trockenraumdichten der Böden wurden mit je 2 - 3 Stechzylinderproben für jeden Horizont bestimmt. Die Bodenmasse wurde feucht gewogen, bei Zimmertemperatur getrocknet und trocken gewogen. Das Volumen der Stechzylinder betrug $V = 358 \text{ cm}^3$. Daraus erhält man die

Feuchtraumdichte (wet bulk density) $\rho_{bf} = \text{Bodenmasse feucht}/V$
 Trockenraumdichte (dry bulk density) $\rho_{bt} = \text{Bodenmasse trocken}/V$

Die Differenz $\rho_{bf} - \rho_{bt}$ ergibt den (aktuellen) volumetrischen Wassergehalt des Bodens, wobei die Dichte des Wassers gleich 1 gesetzt wird. Da die Böden bei der Probenahme nahezu wassergesättigt waren, liegen die Wassergehalte relativ hoch. Die Ergebnisse sind in Tab. 3.3.2.1 wiedergegeben.

Boden	Horizont	ρ_{bf} [g/cm ³]	ρ_{bt} [g/cm ³]	θ [cm ³ /cm ³]
Auen- rendzina	A _p	1,99	1,69	0,30
	C	1,98	1,70	0,29
	C _c	1,85	1,58	0,27
	FG _r C _c	1,96	1,63	0,33
	IIfG _r	1,95	1,65	0,31
	IIIIG _r	1,63	1,59	0,04
	IVG _r	1,73	1,69	0,04
	Mittelwerte	1,95*	1,65 ± 0,04	0,30*
Para- braunerde	A _p	1,83	1,50	0,33
	A ₁	1,85	1,54	0,31
	B _t A ₁	1,90	1,58	0,32
	A ₁ B _t	1,89	1,57	0,32
	B _{t1}	1,92	1,59	0,33
	B _{t2}	1,97	1,63	0,34
		Mittelwerte	1,89 ± 0,05	1,57 ± 0,04

* Mittelung nur über die Horizonte A_p bis IIfG_r

Tabelle 3.3.2.1 Feuchtraumdichte, Trockenraumdichte und volumetrischer Wassergehalt der Böden

Weitere physikalisch-chemische Daten der beiden Böden sind in Tab. 3.3.3.1 zusammengefaßt. Die Bestimmung des pH-Wertes der einzelnen Bodenhorizonte erfolgte zunächst, wie üblich, nach Equilibrierung der Bodenproben mit 0,01 M CaCl_2 . Zusätzlich wurde jedoch auch der pH-Wert der "Bodenlösung" bestimmt, wie er sich nach Versetzen der Bodenproben mit 2,5 ml dest. Wasser pro Gramm Boden nach 3 Tage Schütteln einstellt (s. auch Abschnitt 4.2). Die Sorptionswerte - Austauschkapazitäten von Na, K, Ca, Mg sowie der Kationen insgesamt - wurden nach Mehlich bestimmt, der Carbonatgehalt nach Scheibler und die organische Substanz oxidimetrisch. Beide Böden haben neutrale bis schwach basische pH-Werte. Auffallend ist der hohe Carbonatgehalt der Auenrendzina und der hohe Eisengehalt der Parabraunerde.

Boden Probenahme- ort	Hori- zont	Tiefe (cm)	pH		KAK (T-Wert) mVal/ 100g Boden	Na K Ca Mg austauschbar mVal/100g Boden				Mg Na Mn Fe mg/100 g Boden				Carbonate als CaCO ₃ %	Ges.C %	Ges.N %
			0,01 m CaCl ₂	Boden- lösung												
Auen- rendzina (Biblis)	A _p	0 - 22	7,5	8,3	16,4	0,12	0,82	14,2	1,25	11	3	14,1	11	14,7	1,19	0,15
	C	22 - 30	7,5	8,3	17,7	0,07	0,56	15,8	1,28	11	1	13,7	10	14,3	1,15	0,14
	C _c	30 - 47	7,6	8,2	16,2	0,07	0,22	14,6	1,33	11	1	9,8	9	42,1	1,01	0,14
	fG _r C _c	47 - 90	7,8	8,1	8,5	0,08	0,06	7,2	1,20	12	2	1,4	6	38,5	0,25	0,03
	II fG _r	90 - 128	7,8	8,2	6,4	0,06	0,07	5,2	1,10	11	1	0,2	8	34,9	0,14	0,01
III G _r	128 - 132	8,0	8,2	0,7	0,01	0,02	0,6	0,10	2	0,5	0,4	4	2,2	0,02	0,01	
Parabraun- erde (Eschweiler- Lohn)	A _p	0 - 31	6,7	7,3	8,7	0,02	0,37	8,1	0,25	3	1	18	43	0,2	2,41	0,11
	A ₁	31 - 52	6,9	7,4	9,5	0,08	0,11	8,4	0,35	5	2	13	48	0,2	0,71	0,05
	B _t A ₁	52 - 62	6,8	7,2	8,3	0,10	0,10	7,6	0,50	7	3	19	47	0,2	0,34	0,04
	A ₁ B _t	62 - 73	6,7	6,8	8,3	0,10	0,10	7,5	0,60	8	3	25	43	<0,2	0,30	0,04
	B _{t1}	73 - 88	6,4	6,7	12,5	0,10	0,20	9,3	1,00	11	3	22	27	Spuren	0,30	0,04
B _{t2}	>88	6,1	6,2	13,2	0,10	0,20	9,4	1,20	13	3	16	17	Spuren	0,25	0,03	

Tabelle 3.3.3.1 Die physikalisch-chemischen Daten der Böden

4. Methoden

4.1 Radionuklide

Die verwendeten Radionuklide sind in der Tabelle 4.1.1 aufgeführt. Sie wurden, bei den Firmen Amersham Buchler, Braunschweig, und New England Nuclear, Dreieich, gekauft. Aufgrund der unterschiedlichen Halbwertszeiten der Nuklide wurden einige nur bei Sorptionsmessungen, andere nur bei Säulenversuchen eingesetzt. Gemessen wurde in allen Fällen die Gammastrahlung der Nuklide, wobei die in Tab. 4.1.1 angegebenen Linien zur Auswertung herangezogen wurden.

Element	Isotop	chemische Verbindung	HWZ	Meßlinie (keV)	eingesetzt bei
Cäsium	Cs-137	$^{137}\text{CsCl}$	30.2 a	661.5	B + S
Strontium	Sr-85	$^{85}\text{SrCl}_2$	64.8 d	514.0	B + S
Cer	Ce-139	$^{139}\text{CeCl}_3$	137.6 d	165.9	S
	Ce-141	$^{141}\text{CeCl}_3$	32.5 d	145.4	B
Jod	J-125	Na^{125}J	59.9 d	35.5	B
	J-131	Na^{131}J	8.02 d	364.5	B
Ruthenium	Ru-103	Chloro-Komplexe	39.4 d	497.0	B
	Ru-106	Chloro-Komplexe	368.0 d	511.9 622.9	S
Technetium	Tc-95m	$^{95\text{m}}\text{TcO}_4$	61 d	204.0	B + S

HWZ = Halbwertszeit; a = Jahr; d = Tag

B = bei Sorptionsmessungen eingesetzt; S = bei Säulenversuchen eingesetzt

Tabelle 4.1.1 Die verwendeten Radionuklide

4.2. Sorptionsmessungen (Batch-Versuche)

4.2.1. Probenvorbereitung

Die in Polyäthylensäcken transportierten naturfeuchten Bodenhorizonte der beiden Probenahmestellen wurden in Plastikwannen von Hand grob zerkleinert, wobei eventuell vorhandenes Wurzelwerk entfernt wurde. Nach Lufttrocknung wurde das Material mit einem Prüfsieb nach DIN 4188 der Maschenweite 2 mm gesiebt. Die Körnung ≤ 2 mm wurde anschließend gut durchmischt in 5 L.-Weithals Polyäthylenbehälter mit luftdichtem Schraubdeckel abgefüllt. Die Körnung > 2 mm wird als Rückstellprobe aufbewahrt.

4.2.2. Herstellung der Bodenlösung

Das für die sandigen Böden im Rahmen von PSE I entwickelte Standardverfahren zur Bestimmung von K_d -Werten mittels Batch-Versuchen erwies sich für Böden mit größerem Ton und Huminstoffgehalt als nicht mehr geeignet. Um die hierbei störenden Lösungsvorgänge im System Boden-demineralisiertes Wasser weitgehend zu verhindern, wird jetzt statt entionisiertem Wasser eine aus einer Parallelprobe lufttrockenen Bodens gewonnene Gleichgewichtsbodenlösung im Verhältnis 1 : 2,5 eingesetzt.

Zur Herstellung der Bodenlösung werden lufttrockener Boden und demineralisiertes Wasser ebenfalls im Verhältnis 1 : 2,5 angesetzt und auf einem Gerät der Fa. Bühler (Typ SM) intensiv geschüttelt. Alternativ dazu wurde das im 4.2.3. beschriebene Intervallrotationsschüttelverfahren angewandt. Anschließend erfolgt 45 Minuten lang Zentrifugation bei 4500 U/min in einer Heraeus Christ Varifuge GL. Bei nicht klarer überstehender Lösung ist nach Abtrennen derselben weitere Zentrifugation erforderlich.

Als Kriterium für das Gleichgewicht bei klarer Lösung dienten die Messung der Leitfähigkeit, der Wasserstoffionenkonzentration und des Redoxpotentials, sowie die Bestimmung der Mg-, K- und Ca-Konzentration mittels Atomabsorption. Bei beiden Schüttelmethoden stellte sich heraus, daß sich außer den beiden A_p -Horizonten (und dort nur bei der Ca-Konzentration und deshalb auch der Leitfähigkeit) nach 3 Tagen Gleichgewicht einstellte. Beim Intensivschüttelverfahren liegen die Leitfähigkeiten der A_p -Horizonte höher, ebenso die Ca-Konzentrationen. Ein sehr schwacher Anstieg der Meßwerte ab dem 4. Tag dürfte auf Abtriebeffekte zurückzuführen sein.

4.2.3 Bestimmung des Verteilungskoeffizienten K_d

Bei der Untersuchung der Sorption stellte sich bei Vorversuchen heraus, daß das in PSE I angewandte langsame Linearschütteln bei den bindigen Böden Auenrendzina und Parabraunerde nach 2 bis 3 Tagen (siehe GSF-Bericht S-788) keine befriedigenden Ergebnisse liefert. Versuche zum Einfluß der Zentrifugationsgeschwindigkeit ergaben, daß 3000 U/min mit 30 Minuten Dauer nicht ausreichend ist. Klare überstehende Lösungen erhält man in einer Heraeus Christ Varifuge GL erst bei 4500 U/min und 45 Minuten Dauer. Diese Lösungen wurden anschließend (in Anlehnung an PSE II) durch ein 0,45 μ Acetylacetatmikrofilter gezogen. Das Filter wurde kurz mit demineralisiertem Wasser gespült und mit conc. Salpetersäure verascht. Es konnten keine an eventuell vorhandenen Schwebstoffen sorbierte Radionuklide (Sr-85 bzw. Cs-137) nachgewiesen werden. Weiterhin stellte sich heraus, daß die Gleichgewichtseinstellung mehrere Wochen dauern kann. Bei den obersten Horizonten besteht deshalb beim Schüttelverfahren des PSE I (Bachhuber et al. 1981) die Gefahr des Algenwachstums an der Lösungsoberfläche.

Um einen besseren und trotzdem abriebsschonenden Kontakt zwischen Boden und Lösung zu erreichen und damit Algenwachstum zu verhindern, haben wir das sog. Intervall-Rotationschüttelverfahren (IRS-Verfahren) angewandt.

In den im PSE I verwendeten Zentrifugenbechern aus Polypropylen (Fa. Kartell No. 308) befindet sich an der Wand je ein eingespannter U-förmiger Plexiglasstab, der bis zum Deckel reicht. In diesem Becher befindet sich je 10 g lufttrockener Boden, 24,5 ml der nach 4.2.2 hergestellten Bodenlösung einer Parallelprobe und 0,5 ml Radionuklidcocktail, dessen Einzelaktivitäten genau vermessen sind (s. Abb. 4.2.3.1). Die Zentrifugenbecher sind so in eine Plexiglastrommel eingespannt, daß sie auf einem Kugelmühlenwalzenstuhl um ihre Längsachse rotieren (Abb. 4.2.3.2), Rotation mit ca. 1 U/min je 15 Minuten mit einer Pause von 1 h 45 min. Zur Bestimmung der Radionuklidaktivitäten in der Lösung werden die Meßproben nach einer vorgegebenen Zeit aus der Trommel genommen und wie oben beschrieben zentrifugiert. 15 ml der überstehenden klaren Lösung werden in eine 50 ml Polyäthylenglasflasche pipettiert und auf einem Reinstgermaniumdetektor γ -spektrometrisch vermessen. Aus den eingesetzten Radionuklidaktivitäten und den in der Lösung verbliebenen Aktivitäten können nach Formel 2.1 die Verteilungskoeffizienten berechnet werden.

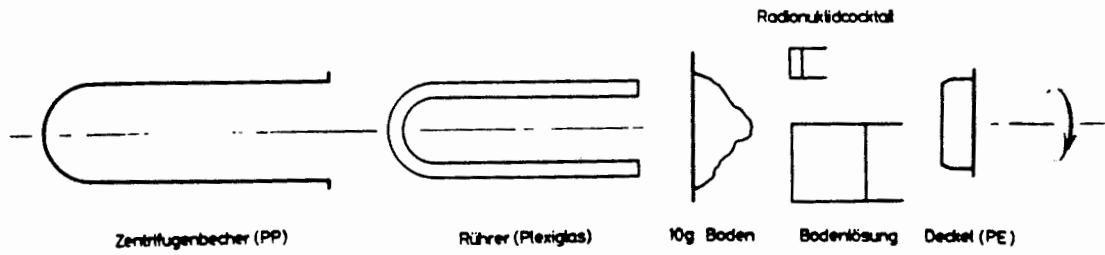


Abb. 4.2.3.1: Zentrifugenbecher mit Plexiglasrührer und Bodenprobe

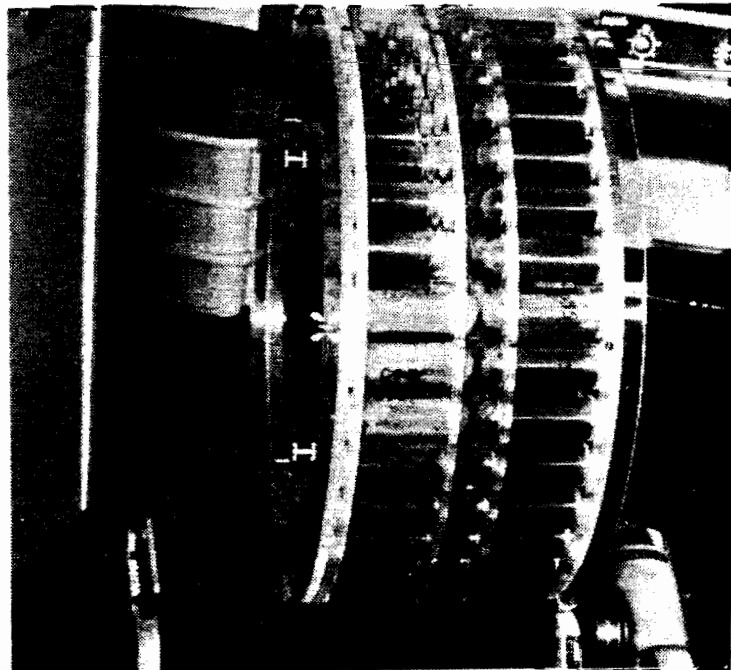


Abb. 4.2.3.2: Plexiglastrommel mit Zentrifugenbechern auf Kugelmühlenswalzenstuhl

Dazu muß jedoch sichergestellt sein, daß sich das Sorptionsgleichgewicht innerhalb der Versuchsdauer eingestellt hat. Dies wurde für jedes Radionuklid und jeden Bodenhorizont überprüft, indem die Kinetik der Sorption und Desorption der Radionuklide ermittelt wurde (4.2.4.). Dabei ergab sich, daß sich der Sorptionskoeffizient nach ca. 20 Tagen für die meisten hier untersuchten Böden weitgehend eingestellt hat. Als Verteilungskoeffizienten werden deshalb die 20-Tages-Mittelwerte aus der Vierfachbestimmung und die relativen Fehler angegeben und als Standardwerte bezeichnet.

Zusammenfassend ergibt sich damit folgende Arbeitsweise zur Bestimmung des K_d -wertes:

- Herstellung der Bodenlösung: 3 Tage Schütteln einer Mischung Boden: demineralisiertes Wasser im Verhältnis 1:2,5.
45 Minuten Abzentrifugieren oder länger bei 4500 U/min bis Lösung klar ist, evtl. Abtrennung wiederholen.
- Mischung von 10 g Boden und 24,5 ml Bodenlösung derselben Horizonte + 0,5 ml Radionuklidlösung (Cocktail). Schütteln nach Intervall-Rotations-Verfahren für 20 Tage, Abzentrifugieren wie oben.
- Bestimmung der verbleibenden Aktivitäten in der Lösung und Berechnung des K_d -wertes nach Formel (2.1.).
- Berechnung des Mittelwerts und des Fehlers aus Vierfachbestimmung.

4.2.4. Kinetik der Sorption und Desorption

Zur Ermittlung der Zeitabhängigkeit des K_d -wertes wird die Meßlösung nicht verworfen, sondern anschließend wieder quantitativ zur Bodenprobe in den Zentrifugenbecher zurückgegeben und weiter IRS geschüttelt. Dieser Vorgang wird jeweils nach einer Zeitspanne von 1-3 Tagen wiederholt, bis keine weitere Änderung der Konzentration der in der Lösungsphase verbliebenen Nuklide festgestellt wird. Von jedem Bodenhorizont wird eine Vierfachbestimmung durchgeführt.

Zur Bestimmung der Kinetik der Desorption werden alle Proben, mit denen die Sorption untersucht wurde, wie oben beschrieben zentrifugiert. Die gesamte überstehende klare Lösung wird entnommen und durch dieselbe Menge einer nach 4.2.2. hergestellten Bodenlösung einer Parallelprobe ersetzt. Nach Aufschütteln von Hand werden die Proben wieder dem IRS-Verfahren unterwor-

fen. Die Bestimmung der momentanen Desorptionsfaktoren erfolgt genauso wie die der momentanen Sorptionsfaktoren.

Versuchsdauer mehrere Monate (evtl. bis 1/2 Jahr). Die Ergebnisse sind in 5.1.1 dargestellt.

4.2.5 Abhängigkeit des K_d -Wertes von der Kalium- und Kalzium-Konzentration der Bodenlösung

Von einer nach 4.2.2 hergestellten Gleichgewichtsbodenlösung werden ca. 10 Lösungen mit verschiedenen Kaliumnitrat- bzw. Kalziumnitratkonzentrationen hergestellt. Die untere Konzentrationsgrenze ist durch die Gleichgewichtsbodenlösung gegeben, die obere durch die Löslichkeit von KNO_3 bzw. $Ca(NO_3)_2$. Die Proben werden im selben Verhältnis wie in 4.2.3 beschrieben angesetzt, derselbe Radionuklidcocktail zugesetzt und dem IRS-Verfahren unterworfen. Zusätzlich zu den 4 radioaktiven Proben pro vorgewählter Kalium- bzw. Kalziumkonzentration läuft eine fünfte inaktive Probe mit. Aus letzterer wird mittels AAS die Kalium- bzw. Kalziumkonzentration bestimmt, nachdem sich Gleichgewicht eingestellt hat. Da die Einzelaktivitäten des Radionuklidcocktails vor der Zugabe und nach der Gleichgewichtseinstellung γ -spektrometrisch wie in 4.2.3 vermessen werden, können die Verteilungskoeffizienten nach Formel 2.1 berechnet werden.

Unsere Ergebnisse sind für die Auenrendzina und die Parabraunerde in 5.1.3 graphisch dargestellt.

4.3 Säulenversuche

4.3.1 Die Säulenanlage

Die Säulen wurden nach dem im Bericht über PSE I (Bachhuber et al. 1981) beschriebenen Verfahren im Labor aufgestellt: Am unteren Ende der Säulen wurden ca. 5 cm Bodenmaterial entfernt und durch Filterkies (0,5 - 1 mm) ersetzt. Dann wurde eine Bodenplatte aus PVC mit Auslaufstutzen aufgeklebt. Nach dem Aufstellen der Säulen wurde grobes organisches Material (Getreidereste, Stroh, Wurzeln) von der Bodenoberfläche entfernt und die Oberfläche eingeebnet. Für jede Säule wurde ein neuer Regenaufsatz gebaut. Unmittelbar

nach dem Aufstellen wurde mit der wöchentlichen Beregnung begonnen. Die Beregnungsmenge betrug bei der Auenrendzina $750 \text{ cm}^3/\text{Säule}$ entsprechend 550 mm Jahresniederschlag und bei der Parabraunerde $950 \text{ cm}^3/\text{Säule}$ entsprechend 700 mm Jahresniederschlag. Die Zusammensetzung des künstlichen Regenwassers ist dem Bericht ([redacted] et al. 1981) zu entnehmen.

Bei allen Säulen konnten nach einigen Wochen die ersten Sickerwasser unterhalb der Säulen aufgefangen werden. Es wurden wöchentlich die Durchflußmenge, die Leitfähigkeit, der pH- und der E_h -Wert gemessen.

4.3.2 Aufbringen der Radionuklide

Nachdem sich die Durchflußmengen der Sickerwasser stabilisiert hatten, wurde zur Messung der hydrodynamischen Parameter (Abstandsgeschwindigkeit des Sickerwassers, Dispersionskoeffizient, volumetrischer Wassergehalt) einmalig Tritium-markiertes Regenwasser (Aktivität ca. 70 KBq) auf die Säulen der Parabraunerde im Februar 1982 aufgebracht, auf die Säulen der Auenrendzina im März 1983. Dabei wurde der Boden mit 200 ml Regenwasser angefeuchtet, die in 200 ml Regenwasser gelöste Tritiumaktivität aufgebracht und mit der restlichen Regenmenge nachberechnet. Nach 3 - 4 Wochen konnte im Sickerwasser aller Säulen das erste Tritium nachgewiesen werden.

Die Radionuklide, deren Wanderungsgeschwindigkeit bestimmt werden sollte, wurden in der gleichen Weise wie Tritium aufgebracht, bei den Säulen der Parabraunerde im Oktober und Dezember 1982, bei den Säulen der Auenrendzina im März und April 1983. Es wurden möglichst langlebige, γ -spektrometrisch günstige Isotope der jeweiligen Elemente verwendet. Da es vom Element Jod kein in diesem Sinne geeignetes Isotop gibt, wurde auf Säulenversuche mit Jod verzichtet. Sr-85 und Ru-106 wurden jeweils alternativ aufgebracht, weil diese Nuklide sich bei gleichzeitiger Messung gegenseitig stören.

Tritium wurde im Eluat der Säulen β -spektrometrisch gemessen (von [redacted] und [redacted] vom Institut für Radiohydrometrie, GSF). Um Störungen durch das bei allen Säulen im Eluat erscheinende Tc-95m zu vermeiden, wurden Aliquote der Sickerwasser destilliert, so daß in der Meßlösung nur Tritium als radioaktive Substanz vorlag. Tc-95m im Eluat wurde mit einem Reinst-Germanium-Detektor γ -spektrometrisch bestimmt.

4.3.3 Scanner und Meßtechnik

Eine Gesamtansicht des Meßplatzes gibt Abb. 4.3.3.1. Die Säulen rotieren während der Messung auf einem Drehteller, um Inhomogenitäten des Bodens auszugleichen. Die Strahlung der Radionuklide wird mit einem auf- und abfahrbaren Gammastrahlen-Detektor ("Scanner") gemessen und in einem Vielkanalanalysator ND 600 der Firma Nuclear Data registriert und ausgewertet. Einzelheiten sind dem Bericht über PSE I ([REDACTED] et al. 1981) zu entnehmen. Zwei Veränderungen des Meßplatzes sind zu erwähnen. Erstens wurde der alte Drehteller nicht weiter verwendet, weil die Tragfläche aus Aluminium einem großen, konstruktionsbedingten Verschleiß unterworfen war. Es wurde ein völlig neu konstruierter Drehteller gebaut, dessen Aluminiumplatte auf einem großen Kugellager aufliegt, so daß Abriebprobleme vermieden wurden. Zweitens wurde der vorhandene NaJ-Kristall des Scanners, der für die gleichzeitige Messung mehrerer Radionuklide eine zu schlechte Auflösung hatte, durch einen Reinst-Germanium-Detektor ersetzt, der eine wesentlich höhere Auflösung und eine gute Ansprechwahrscheinlichkeit aufweist. Der Einbau dieses Detektors erforderte eine erhebliche Umkonstruktion des Scanners, da das Dewargefäß für die Kühlung mit flüssigem Stickstoff in den beweglichen Scanner-Kasten mit eingebaut werden mußte (siehe Abb. 4.3.3.2).

4.3.4 Meß- und Auswertverfahren

4.3.4.1 Meßprinzip

Die Säulen wurden meßtechnisch in N Schichten von je 1 cm Dicke eingeteilt, weil der Kollimatorschlitz des HPGe-Detektors eine Breite von 1 cm hatte. Die in einer bestimmten Tiefe (von der Oberfläche an positiv gerechnet) gemessene Strahlung stammt nicht nur aus der betreffenden Schicht, sondern auch aus den darüber- und darunterliegenden Schichten. Deshalb mußten die gemessenen Scannerwerte m_i (Schicht-Nr. i) umgerechnet werden in die Aktivitäten a_i . Den Zusammenhang zwischen dem Satz \underline{m} der m_i und dem Satz \underline{a} der a_i stellt die Matrix (w_{ij}) der Gewichtsfaktoren w_{ij} her (ausführliche Darstellung siehe Bachhuber et al. 1981):

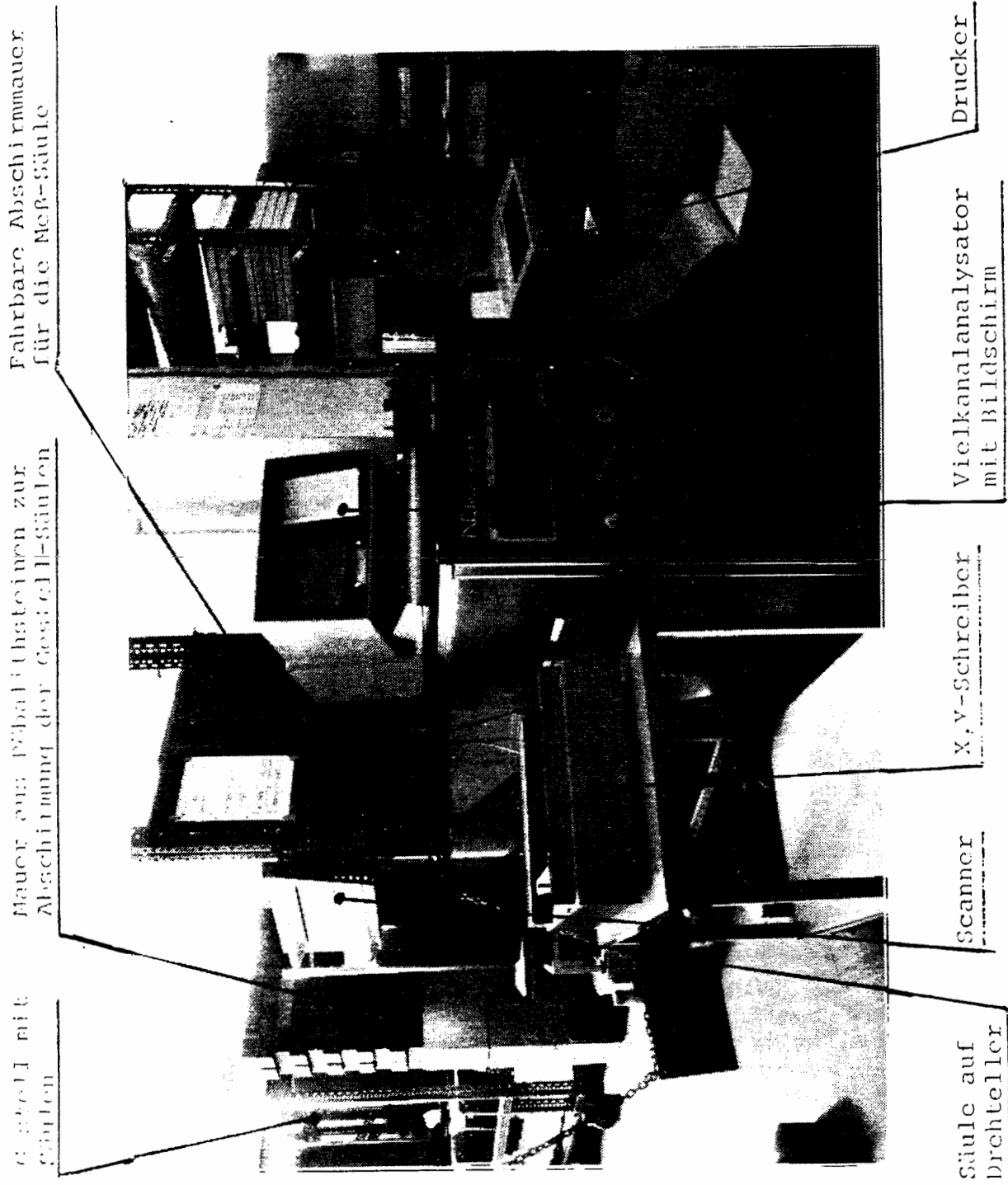
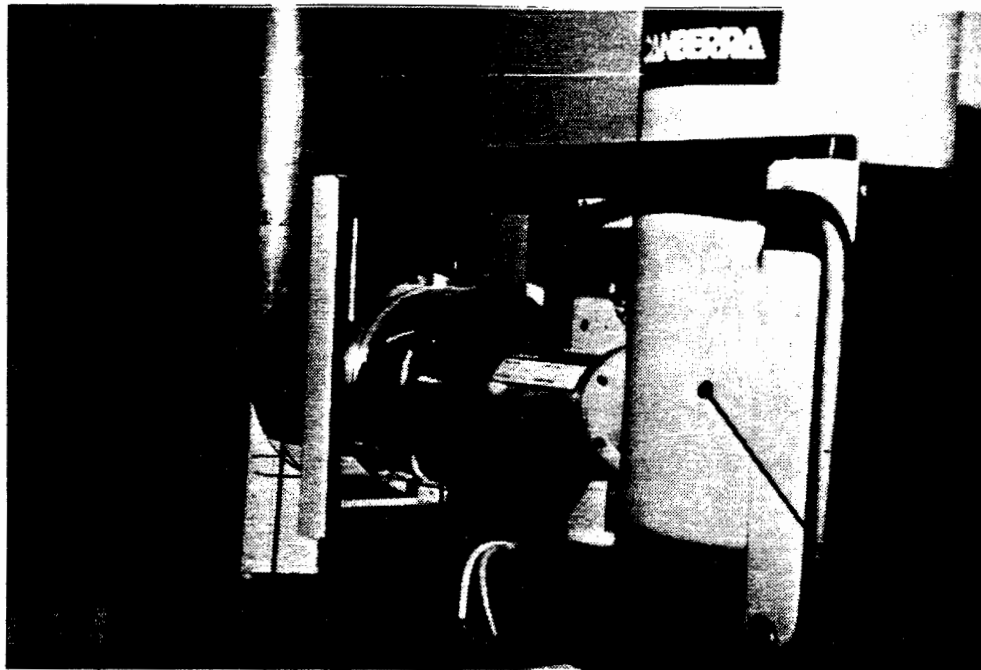


Abb. 4.3.3.1. Der Meßplatz für die Säulen



Bodensäule Bleiabschirmung HPGe-Detektor Scanner-Kasten Dewar-Gefäß
mit Kollimator

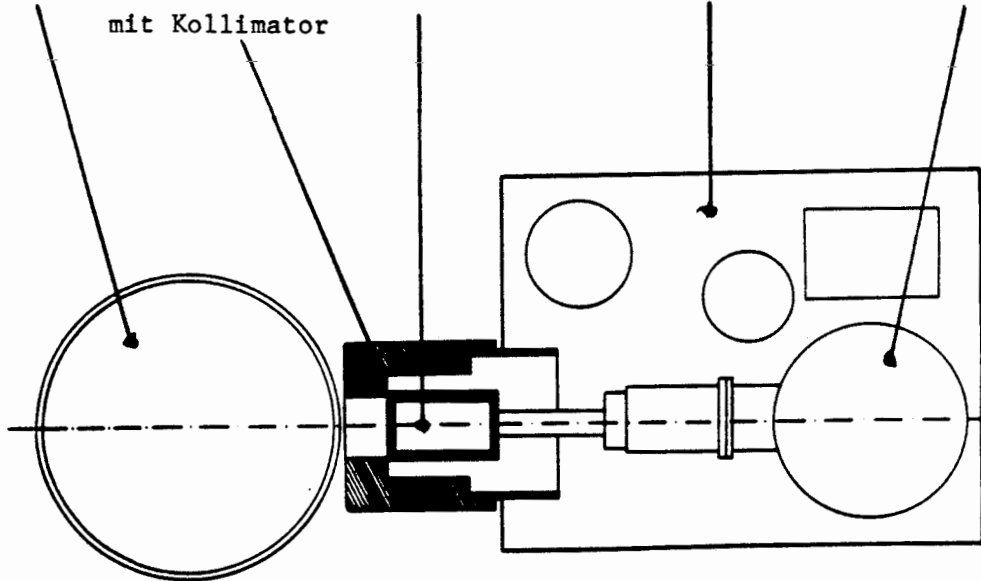


Abb. 4.3.3.2: Scanner mit Bodensäule

$$\underline{m} = (\underline{w}_{ij}) * \underline{a}$$

$$(\underline{w}_{ij}) = \begin{pmatrix} 1 & e_1 & e_2 & \dots & e_n \\ e_1 & 1 & e_1 & \dots & e_{n-1} \\ \cdot & & & & \\ \cdot & & & & \\ e_n & e_{n-1} & e_{n-2} & \dots & 1 \end{pmatrix}$$

Die Eichfaktoren e_i wurden für jedes Radionuklid an einer Modellsäule, deren Schichten bekannte Aktivitäten der verwendeten Radionuklide enthielten, gemessen, und zwar sowohl für die Abschwächung der Strahlung im Boden wie für diejenige in Luft (bis $i = 10$, $e_i (i > 10) = 0$). Die e_i sind von Energie zu Energie verschieden. Für Ce-139 (Linie 166 keV) und Tc-95m (204 keV) konnten jedoch dieselben e_i benutzt werden, ebenso für Ru-106 (512 keV) und Sr-85 (514 keV). Die a_i wurden mit einem Least-Square-Fit ermittelt, indem die gemessenen m_i durch einen Satz zunächst willkürlich gewählter a_i angenähert wurden. Die Rechnungen erfolgten an einem Tischcomputer Tektronix 4051.

4.3.4.2 Berechnung der Retardationsfaktoren

Die Retardationsfaktoren R_d eines Radionuklids kann man nicht unmittelbar aus der Tiefenverteilung a_i der Aktivitäten des Radionuklids entnehmen. Vielmehr muß man dazu die Transportgleichung des Radionuklids lösen, was im allgemeinen nur durch numerische Integration möglich ist.

Die Aktivität a_i des Nuklids in der Bodenschicht i setzt sich zusammen aus der in der Bodenlösung gelösten Aktivität c_i (Bq/cm³ Bodenlösung) und der an den Bodenteilchen sorbierten Aktivität q_i (Bq/g Boden):

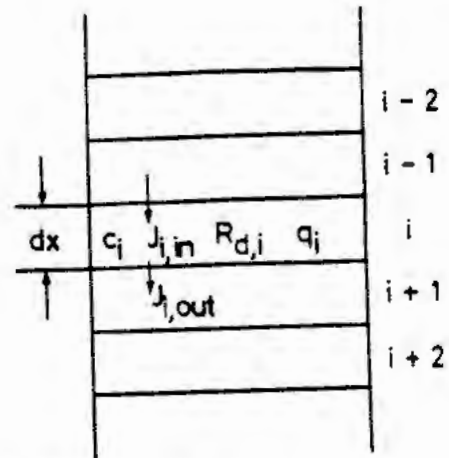
$$a_i = \rho_b \cdot dx \cdot q_i + \theta \cdot dx \cdot c_i; \quad i = 1, \dots, N$$

Im Bereich der Tracer-Konzentrationen der Radionuklide gilt

$$q_i = K_{d,i} \cdot c_i$$

und

$$R_{d,i} = 1 + \frac{\rho_b}{\theta} \cdot K_{d,i}$$



Aus diesen drei Gleichungen ergibt sich, daß die zeitliche Änderung von c_i der Differenz aus dem in die Schicht i eintretenden Nuklidstrom $J_{i,in}$ und dem aus der Schicht austretenden Strom $J_{i,out}$ proportional ist ([redacted] et al. 1981).

$$\frac{\delta c_i}{\delta t} = \frac{J_{i,in} - J_{i,out}}{R_{d,i} \cdot dx} - \lambda \cdot c_i; J_i = -D_L \cdot \text{grad } C_i + v_a \cdot C_i$$

Diese N Transportgleichungen haben die Anfangsbedingungen

$$c_i (t = 0) = c_{i0}$$

und die Randbedingungen

$$J_{i,in} = J_{i-1,out} \quad i = 2, 3, \dots, N$$

$$J_{1,in} = \begin{cases} v_a \cdot c_0 & \text{für } 0 \leq t \leq t_0 \\ 0 & t > t_0 \end{cases}$$

$$J_{N,out} = v_a (1.5 \cdot c_n - 0.5 \cdot c_{N-1})$$

(siehe [redacted] et al. 1974).

v_a ist die Abstandsgeschwindigkeit und D_L der longitudinale Dispersionskoeffizient der Bodenlösung, c_0 die Nuklidkonzentration in der Aufgabenlösung und λ die Zerfallskonstante des Nuklids. Nach der Integration

$$c_i = \int_0^t \frac{\delta c_i}{\delta t} \cdot dt$$

ergeben sich die a_i gemäß

$$a_i = \theta \cdot R_{d,i} \cdot c_i$$

Bei der Anpassung der berechneten a_1 an die gemessenen sind die $R_{d,i}$ die einzigen freien Parameter, wenn man für die ganze Bodensäule mittlere θ und ρ_b annimmt, was bei den hier untersuchten Böden gerechtfertigt ist (siehe Tab. 3.3.2.1 und 5.2.1.2). Darüber hinaus ist es zweckmäßig, für die Bodenschichten eines Horizonts einen einheitlichen R_d -Wert anzunehmen (dies gilt jedoch nicht in jedem Fall).

Die Integration sowie die umfangreichen Parameterveränderungen wurden mit Hilfe der Simulationssprache SICOS am Siemens-Großrechner 7561 des Rechenzentrums der GSF durchgeführt.

4.4 Fehlerbetrachtung

4.4.1 Batchversuche

4.4.1.1 Sorptionsversuche

Für die Bestimmung des K_d -Wertes der Einzelmessung gilt Formel 2.1. Zur Betrachtung der Fehler muß sie jedoch entsprechend den einzelnen Arbeitsschritten umformuliert werden:

$$K = \frac{V_l + V_c}{m_f} \cdot \frac{m_f}{m_{tr}} \cdot \left(\frac{\frac{V_c}{V_{c,s}} \cdot A_0}{\frac{V_m}{V_m} \cdot A_s} - 1 \right) \quad (4.4.1)$$

- mit V_l = Volumen der Bodenlösung
 V_c = Volumen des eingesetzten Radionuklidcocktails
 V_m = Volumen, das zum Vermessen der Restaktivität in der Bodenlösung benötigt wird,
 $V_{c,s}$ = Volumen des Radionuklidcocktails, der zur Bestimmung von A_0 verdünnt und von dem anschließend ein Teil γ -spektroskopisch vermessen wird,
 m_f = Masse des lufttrockenen Bodens,
 m_{tr} = Masse des (bei 105°C, 48h) getrockneten Bodens,
 A_0 = eingesetzte Aktivität des einzelnen Radionuklids,
 A_s = in der Bodenlösung verbliebene Restaktivität.

Für die Ermittlung des Gesamtfehlers im ungünstigsten Fall gilt:

$$\left[\frac{\Delta K_d}{K_d}\right] = \left[\frac{\Delta V_1}{V_1}\right] + 2 \left[\frac{\Delta V_c}{V_c}\right] + 2 \left[\frac{\Delta m_f}{m_f}\right] + \left[\frac{\Delta m_{tr}}{m_{tr}}\right] + \left[\frac{\Delta V_{c,s}}{V_{c,s}}\right] + \left[\frac{\Delta A_0}{A_0}\right] + \left[\frac{\Delta V_m}{V_m}\right] + \left[\frac{\Delta A_s}{A_s}\right] \quad (4.4.2)$$

Der Fehler von $V_{c,s}$ setzt sich zusammen:

$$\left[\frac{\Delta V_{c,s}}{V_{c,s}}\right] = \left[\frac{\Delta V'_{c,s}}{V'_{c,s}}\right] + \left[\frac{\Delta V_v}{V_v}\right] + \left[\frac{\Delta VA_0}{A_0}\right] \quad (4.4.3)$$

mit $V'_{c,s}$ = Volumen des zur Bestimmung von A_0 eingesetzten Radionuklidcocktails,

V_v = Volumen, mit dem $V'_{c,s}$ verdünnt wird,

VA_0 = Volumen, das aus dem verdünnten Cocktail zur γ -spektroskopischen Bestimmung entnommen wird.

Da $m_f \approx m_{tr}$ ist, erhält man als relativen Gesamtfehler im ungünstigsten Fall:

$$\left[\frac{\Delta K_d}{K_d}\right] = \left[\frac{\Delta V_1}{V_1}\right] + 2 \left[\frac{\Delta V_c}{V_c}\right] + 3 \left[\frac{\Delta m_{tr}}{m_{tr}}\right] + \left[\frac{\Delta V'_{c,s}}{V'_{c,s}}\right] + \left[\frac{\Delta V_v}{V_v}\right] + \left[\frac{\Delta VA_0}{A_0}\right] + \left[\frac{\Delta A_0}{A_0}\right] + \left[\frac{\Delta V_m}{V_m}\right] + \left[\frac{\Delta A_s}{A_s}\right] \quad (4.4.4)$$

$V_1, V_c, V'_{c,s}, V_v, VA_0, V_m$ können durch Pipettierfehler, die je nach zu pipettierender Menge zwischen 0.005 und 0.02 liegen, verfälscht werden.

Setzt man $\left[\frac{\Delta V_c}{V_c}\right] \approx \left[\frac{\Delta V'_{c,s}}{V'_{c,s}}\right] = 0.02$

und

$$\left[\frac{\Delta V_1}{V_1}\right] \approx \left[\frac{\Delta V_v}{V_v}\right] \approx \left[\frac{\Delta VA_0}{VA_0}\right] \approx \left[\frac{\Delta V_m}{V_m}\right] = 0.005 \quad ,$$

so beträgt die Summe der Pipettierfehler 0.08. Bei der Bestimmung von m_{tr} ist ein Fehler von $\pm 0,0001$ g erreichbar. Da wir jedoch Differenzwägungen durchführen müssen, ergibt sich im ungünstigsten Fall ein Wägefehler von $\pm 0,0002$ g. Damit verbleibt ein relativer Fehler von

$$3 \cdot \frac{0,0002}{10} = 0,00006$$

und der relative Gesamtfehler ergibt sich mit

$$\left[\frac{\Delta A_0}{A_0} \right] = 0.01 \text{ zu } \left[\frac{\Delta K_d}{K_d} \right] \approx 0.09 + \left[\frac{\Delta A_s}{A_s} \right]$$

Wiegt man dagegen vor und nach jedem Pipettieren, dann reduzieren sich die Pipettierfehler auf die oben genannten Wägefehler und man erhält als relativen Fehler der Einzellösung:

$$\left[\frac{\Delta K_d}{K_d} \right] = 0.0115 + \left[\frac{\Delta A_s}{A_s} \right]$$

Wir haben deshalb nach jedem Pipettieren gewogen. Der relative Fehler der Bestimmung der Restaktivität in der Bodenlösung wird von der Auswertungssoftware unseres ND 66-Systems allgemein nach der Gleichung

$$\left[\frac{\Delta A_s}{A_s} \right] = \frac{\sqrt{\text{Nettofläche} + 2 \text{ Untergrund}}}{\text{Nettofläche}} \quad (4.4.5)$$

ermittelt. (Literatur: Automatic Peak Analysis on Microcomputers, E. von Meerwall und M.D. Gawlik, Computer Physics Communications 5 (1973) 309). Der Gesamtfehler der K_d -Wert-Bestimmung, wie er sich aus den einzelnen Vierfachbestimmungen ergab, ist abhängig vom eingesetzten Nuklid und betrug etwa 10 - 30% rel. Diese Fehler sind in den Tabellen der K_d -Werte jeweils einzeln angegeben.

4.4.1.2 Desorption

Bei der Desorption fallen dieselben Arbeitsschritte wie bei der Sorption an. Zusätzlich muß jedoch die entnommene radioaktive Bodenlösung durch neue inaktive ersetzt werden.

Dies führt in Gleichung (4.4.4) zur Verdoppelung der Fehler

$$\left[\frac{\Delta V_1}{V_1} \right] \text{ und } \left[\frac{\Delta A_0}{A_0} \right] .$$

Die Summe der Pipettierfehler beträgt dann 0.09 und damit

$$\left[\frac{\Delta K_d}{K_d} \right] \approx 0,10 + \left[\frac{\Delta A_s}{A_s} \right] .$$

Im Falle der Nachwägung erhält man

$$\left[\frac{\Delta K_d}{K_d} \right] \approx 0.0216 + \left[\frac{\Delta A_s}{A_s} \right] .$$

Für das Verhältnis $K'_{d,desorpt.} / K_{d,sorpt.} = q$ ergibt sich damit ein relativer Fehler:

$$\left[\frac{\Delta q}{q} \right] = 0.19 + 2 \left[\frac{\Delta A_s}{A_s} \right] \text{ bzw. } \left[\frac{\Delta q}{q} \right] = 0.0331 + 2 \left[\frac{\Delta A_s}{A_s} \right] .$$

Deshalb haben wir auch bei der Desorption jeden Pipettierschritt nachgewogen. Die entscheidende den Fehler bestimmende Größe ist ΔA_s . Wird A_s selbst sehr klein, dann sind sehr lange Meßzeiten (5 - 10 Stunden) erforderlich, um $\left[\frac{\Delta q}{q} \right] < 0.3$ werden zu lassen.

Wird andererseits Gleichung (2.1) umgeschrieben in

$$K_d = \frac{v}{m} \cdot \frac{A_0 - A_s}{A_s} , \quad (4.4.6)$$

so ersieht man daraus, daß, im Falle A_s fast gleich A_0 , die daraus resultierenden sehr kleinen K_d -Werte mit erheblichen Fehlern (bis über 100%) belastet sein können. Deshalb erscheint uns für K_d -Werte < 0.05 nur die Angabe < 0.05 als sinnvoll.

Im allgemeinen ergaben sich die Gesamtfehler aus der Vierfachbestimmung jeden K_d -wertes zu 10 - 30% rel.

4.4.2 Säulenversuche

4.4.2.1 Meßfehler der Nuklidaktivitäten in den Säulen

Bei der Messung bzw. Berechnung der Nuklidaktivitäten in den Säulen waren im wesentlichen folgende Fehler zu berücksichtigen:

- statistischer Zählfehler,
- Höheneinstellung des Scanners,
- Oberflächensenkung des Bodenmonolithen in der Säule,
- Fehler der Eichfaktoren.

Der statistische Zählfehler war aufgrund ausreichend lang gewählter Meßzeiten im allgemeinen zu vernachlässigen. Nur bei kleinen Zählraten, wie sie vor allem bei der Messung von Sr-85 und Tc-95m wegen deren kurzer Halbwertszeit im Laufe des Versuchszeitraums auftraten, fiel dieser Fehler ins Gewicht. Bei Tc-95m war der Zählfehler wegen der starken Verbreiterung der Tiefenverteilung der Aktivität am größten.

Die Höheneinstellung des Scanners war über den gesamten Meßzeitraum auf ca. ± 1 mm reproduzierbar. Da die Eichkurven eine Halbwertsbreite von 20 - 30 mm hatten, war dieser Fehler nur bei den relativ "scharf" lokalisierten Nukliden Cs-137 und Ce-139 zu berücksichtigen.

Auch die Oberflächensenkung des Bodenmonolithen, die über die gesamte Versuchsdauer 5 bis 10 mm betrug, war nur für Cs-137 und Ce-139 bedeutsam, da nur bei diesen Nukliden die Aktivität in den ersten Zentimetern unter der Oberfläche verblieb.

Die zur Umrechnung der Scanner-Meßwerte in Nuklidaktivitäten benötigten Eichfaktoren hatten einen Meßfehler von $\pm 5 - 10\%$, der bei allen Nukliden in den Gesamtfehler einging. Aus diesen Einzelfehlern ergab sich für die Aktivität von Cs-137, Ce-139, Sr-85 und Ru-106 ein Gesamtfehler von ca. $\pm 20\%$, für die Aktivitäten von Tc-95m ein Fehler von ca. $\pm 30\%$.

4.4.2.2 Fehler der Retardationsfaktoren R_d

Der Fehler der R_d -Werte setzt sich zusammen aus

- dem Fehler der hydrodynamischen Kenngrößen,
- dem Fehler der Aktivitäten (Anpassungsfehler),
- systematischen Fehlern des benutzten Modells.

Die Fehler der hydrodynamischen Kenngrößen betragen je nach Güte der Anpassung (siehe Abb. 5.2.1.1 und 5.2.1.2) ± 10 bis 20%.

Den größten Fehlerbeitrag lieferte die Anpassung der theoretischen an die experimentelle Tiefenverteilung der Aktivitäten. Eine Anpassung, die sich über die gesamte Kurve innerhalb der Fehlergrenzen der Aktivitäten bewegte, war nur selten möglich.

Ein Beispiel für eine relativ gute Anpassung zeigt Abb. 4.4.2.1. Selbst wenn man die Kurve 4 ausscheidet, weil sie in den Tiefen 1 - 3 cm zu hohe Aktivitäten liefert, so bleibt immer noch ein Fehler von ca. $\pm 30\%$ für den R_d -Wert 3500 aufgrund der Meßfehler der Aktivitäten. Bei den meisten Anpassungen lag dieser Fehler zwischen ± 40 und 60%.

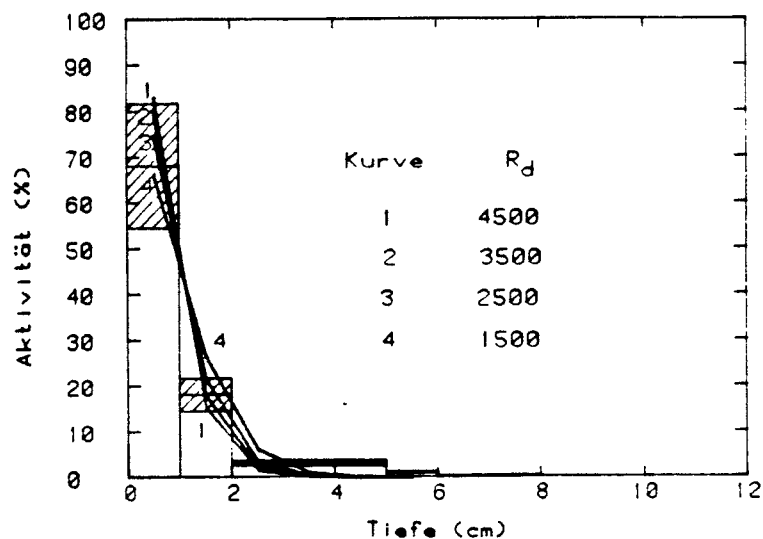


Abb. 4.4.2.1 Bestimmung des Retardationsfaktors R_d von Cs-137 bei der Auenrendzina (Säule B4) durch Anpassung berechneter Tiefenverteilungen (durchgezogene Kurven) an die Meßwerte (schraffierter Fehlerbereich) 365 Tage nach Nuklidabgabe

Die systematischen Fehler des Modells beruhen vor allem auf den vereinfachenden Annahmen, daß θ und ρ_L und damit v_a und D_L als Konstante über die gesamte Länge der Säulen in die Rechnungen eingehen. Dies ist sicher nicht exakt der Fall, jedoch variieren θ und ρ_L nach den Stechzylindermessungen so wenig, daß dieser Fehler im Vergleich zum Anpassungsfehler vermutlich gering ist.

Insgesamt ergibt sich ein Fehler von ca. $\pm 60\%$ für die R_d -Werte von Cs-137, Sr-85, Ce-139 und Ru-106 und von ca. 80% für die R_d -Werte der "langsamen" Fraktion von Tc-95m. Die R_d -Werte der "schnellen" Fraktion von Tc-95m haben einen kleineren Fehler von ca. $\pm 30\%$, weil sie wie die hydrodynamischen Kenngrößen aus Elutionskurven gewonnen wurden, die im allgemeinen besser anzupassen sind als Tiefenverteilungen.

5. Ergebnisse und Diskussion

5.1. Sorptionsmessungen (Batch-Versuche)

5.1.1. Kinetik der Sorption und Desorption

In der Abb. 5.1.1.1 bis 5.1.1.6 ist die Zeitabhängigkeit der (momentanen) Sorptionskoeffizienten K'_d der Nuklide Cs-137, Ce-141, Ru-103, Sr-85 und Tc-95m für die 6 untersuchten Horizonte der Parabraunerde dargestellt, in den Abb. 5.1.1.7 bis 5.1.1.12 für 6 Horizonte der Auenrendzina. Zur Ermittlung der Streuung wurden jeweils Vierfachbestimmungen durchgeführt. Für die Fehlerabschätzung sei auf Kapitel 4.4.1 verwiesen. Eine Fehlerangabe ist in den Tabellen 5.1.2.1 und 5.1.2.2 zu finden.

Bei den Böden hat sich bei allen Nukliden nach 20 Tagen weitgehend Gleichgewicht eingestellt. Eine Ausnahme bildet das Jod, dessen Sorptionskoeffizient mit zunehmender Zeit ansteigt, was auf den Einbau im Boden durch Mikroorganismen (██████████, 1982) zurückzuführen sein dürfte. Für die Sorptionskoeffizienten beider Böden gilt:

$$Tc < J < Sr < Ru < Cs \approx Ce,$$

wobei die Extremwerte 0 und 10^5 sind. Für alle Nuklide hängt der Sorptionskoeffizient zusätzlich von dem untersuchten Horizont ab, wobei die Unterschiede für Tc nur wenig ausgeprägt sind. Der leichte Abfall einiger Kurven mit zunehmender Zeit ist möglicherweise durch eine teilweise Auflösung einzelner Bodenkomponenten während der langen Versuchsdauer bedingt. Die Ergebnisse der Desorptionsversuche für die einzelnen Nuklide und Bodenhorizonte sind in den Abbildungen 5.1.1.13 bis 5.1.1.24 gezeigt. Dabei ist immer das Verhältnis Desorptionskoeffizient $K'_{d, \text{desorpt.}}$ zu Verteilungskoeffizient $K_{d, \text{sorpt.}}$ als Funktion der Zeit aufgetragen. Ein Verhältnis von 1 bedeutet also, daß Sorption und Desorption gleiche Koeffizienten liefern, die Sorption also reversibel verläuft.

Bei der Parabraunerde wird dies für Tc für alle Horizonte, wenngleich im A_p - und A_1 -Horizont erst nach etwa 180 Tagen, beobachtet, wobei die Einstellung eines Wertes < 1 nach noch längerer Zeit nicht ausgeschlossen werden kann. Ebenso wird ein Verhältnis von 1 für Cs im A_1 , B_{t1} und B_{t2} -Horizont, für Ru im A_p -Horizont und für Ce in B_{t1} und B_{t2} -Horizont beobachtet.

Werte für $K'_{d, \text{desorpt.}} / K_{d, \text{sorpt.}} > 1$ werden für Sr in allen 6 Horizonten beobachtet, wenngleich ein Teil der Kurven nach 180 Tagen noch fallende Tendenz zeigt. Möglicherweise erreichen diese nach sehr langen Zeiten (einige Jahre) den Wert 1. Ähnliches gilt für Cs-137 im A_p -Horizont. Die Desorption von Sr verläuft also sehr langsam und eventuell teilweise irreversibel.

Werte für das Verhältnis $K'_{d, \text{desorpt.}} / K_{d, \text{sorpt.}} < 1$ werden in allen anderen Fällen beobachtet. Hier wird also mehr desorbiert als man aufgrund der Ergebnisse der Sorptionsversuche erwarten sollte. Möglicherweise ist dies durch eine teilweise Änderung der chemischen Form (Änderung der Oxidationsstufe) oder durch eine teilweise Auflösung einzelner Bodenkomponenten während der langen Zeitdauer der Versuche verursacht.

Bei der Auenrendzina erhalten wir für Tc für die Horizonte A_p , C, C_c ein Verhältnis $K'_{d, \text{desorpt.}} / K_{d, \text{sorpt.}} > 1$ mit fallender Tendenz, für die Horizonte fG_{rC} und $IIIG_r$ ein Verhältnis < 1 , während sich beim Horizont $IIIIG_r$ ein konstanter Wert von 1 einstellt. Werte von annähernd 1 finden wir für Cs im A_p -Horizont und für Ce und Cs im C-Horizont. Bei Sr stellt sich für alle Horizonte ein Verhältnis > 1 ein, mit z.T. fallender Tendenz. Das Verhalten des Rutheniums ist unterschiedlich: im A_p , C und fG_{rC} -Horizont ist das Verhältnis > 1 mit fallender Tendenz, im $IIIG_r$ -Horizont > 1 mit steigender Tendenz und im C_c - und $IIIIG_r$ < 1 mit fallender Tendenz. Das Cer liefert im A_p , C, fG_{rC} und $IIIIG_r$ -Horizont Verhältnisse < 1 mit fallender Tendenz, im $IIIG_r$ und im C_c -Horizont Verhältnisse > 1 mit Tendenz zu Werten < 1 . Beim Jod finden wir für alle Horizonte ein Verhältnis > 1 .

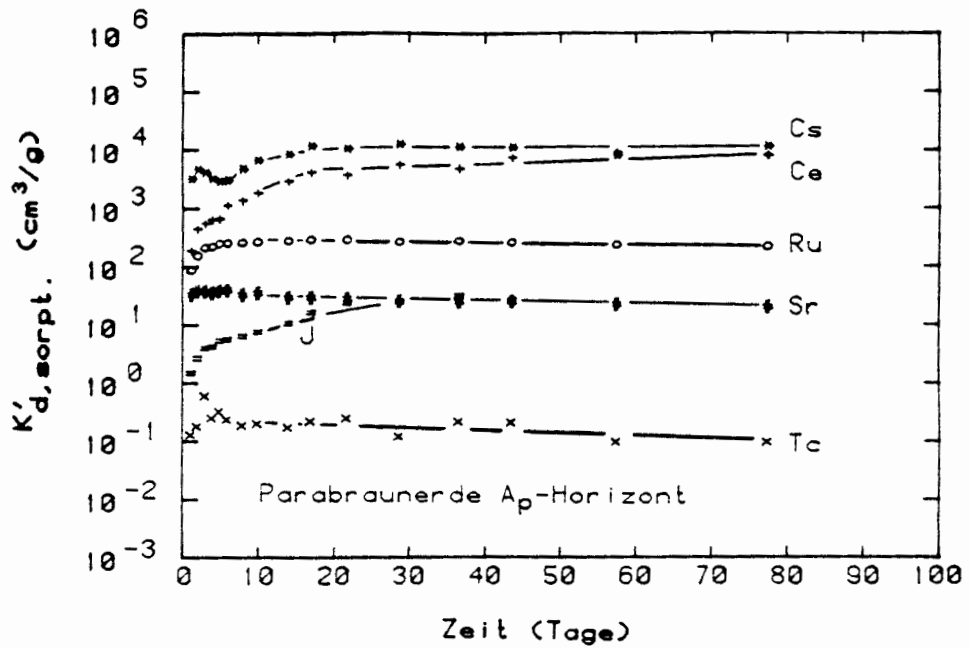


Abb. 5.1.1.1.: Zeitabhängigkeit der Sorptionskoeffizienten des A_p-Horizonts der Parabraunerde.

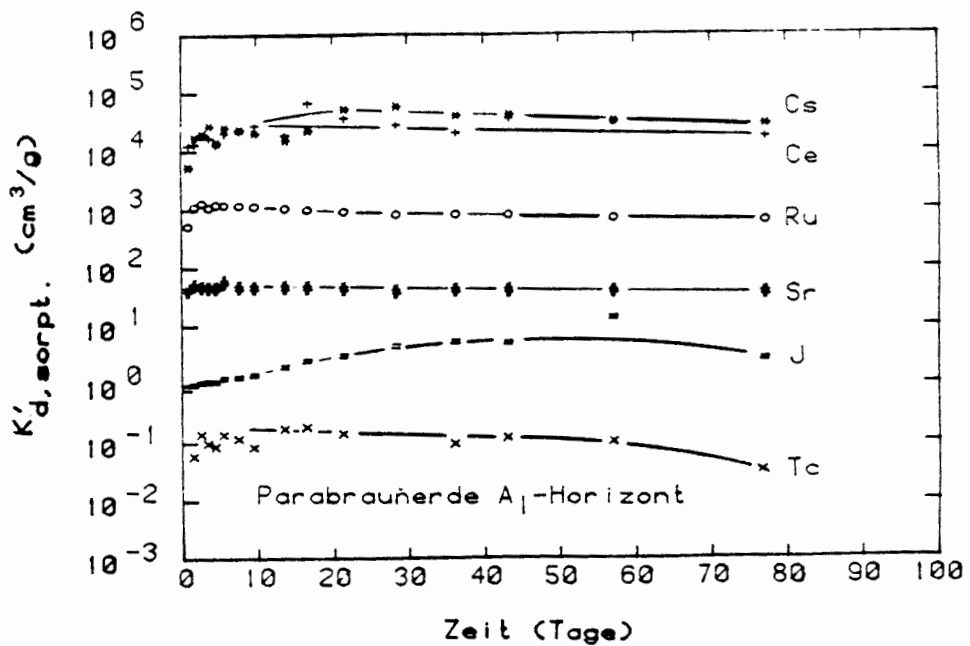


Abb. 5.1.1.2.: Zeitabhängigkeit der Sorptionskoeffizienten des A₁-Horizonts der Parabraunerde.

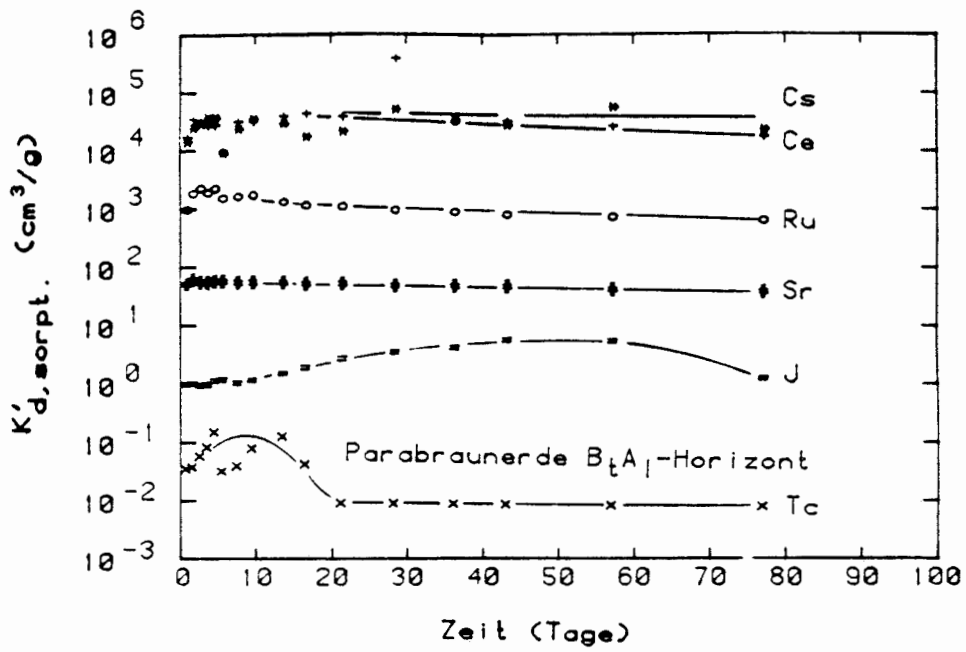


Abb. 5.1.1.3.: Zeitabhängigkeit der Sorptionskoeffizienten des $B_t A_1$ -Horizonts der Parabraunerde.

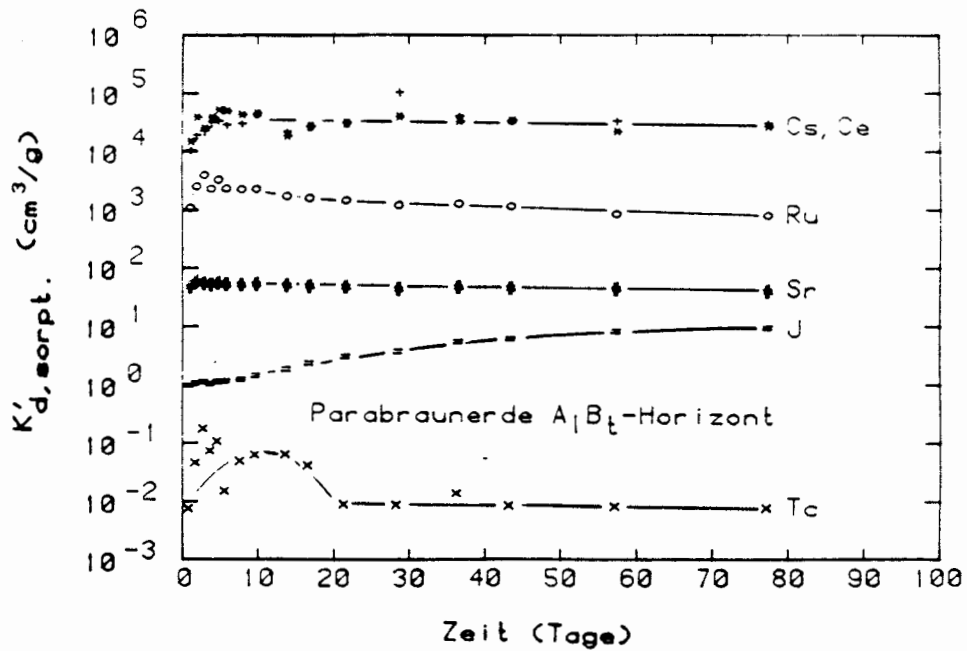


Abb. 5.1.1.4.: Zeitabhängigkeit der Sorptionskoeffizienten des $A_1 B_t$ -Horizonts der Parabraunerde.

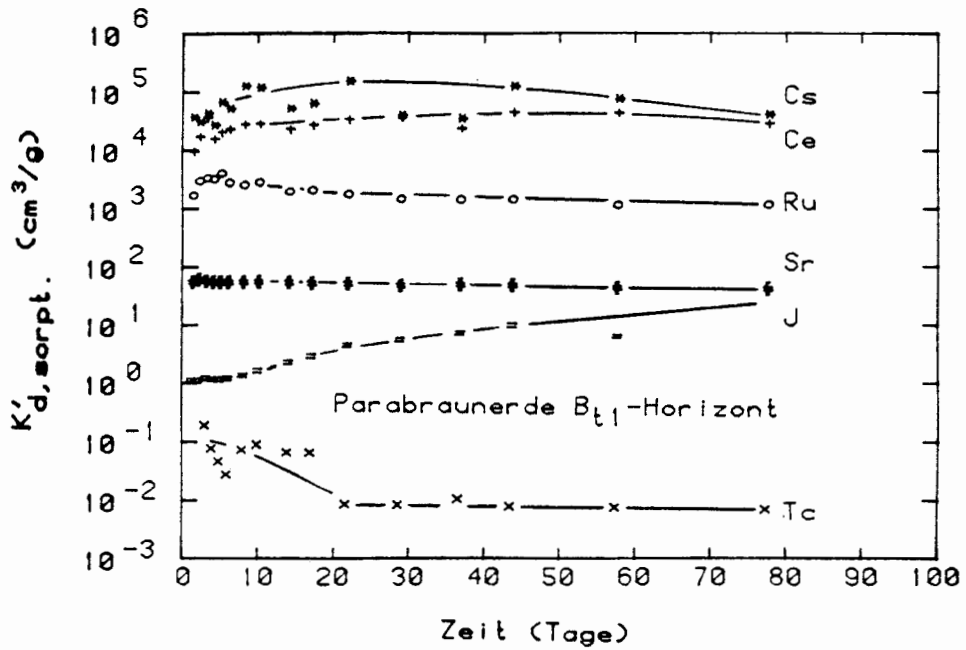


Abb. 5.1.1.5.: Zeitabhängigkeit der Sorptionskoeffizienten des B_{t1}-Horizonts der Parabraunerde.

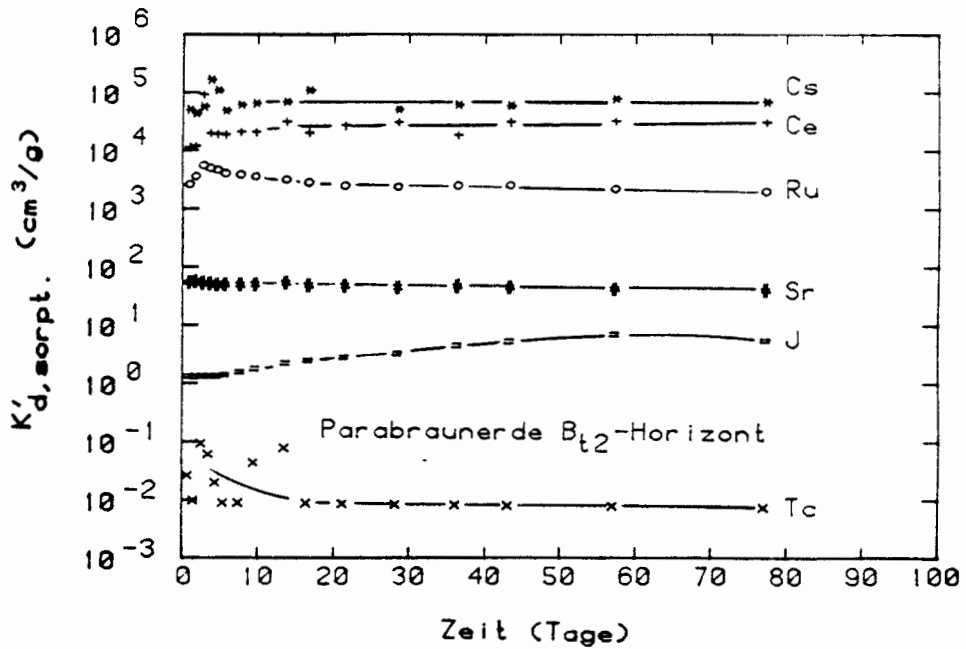


Abb. 5.1.1.6.: Zeitabhängigkeit der Sorptionskoeffizienten des B_{t2}-Horizonts der Parabraunerde.

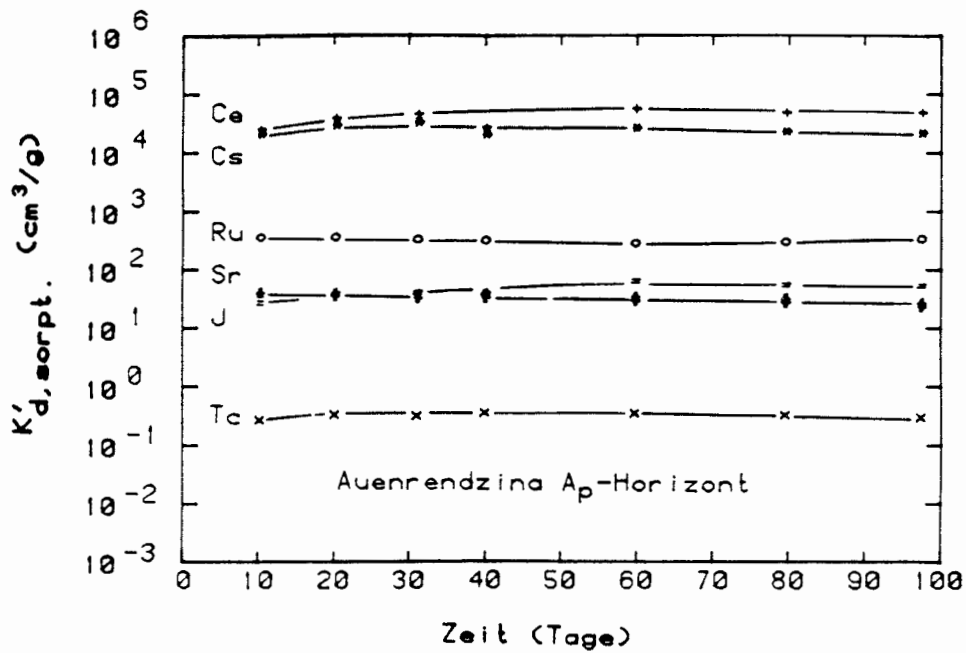


Abb. 5.1.1.7.: Zeitabhängigkeit der Sorptionskoeffizienten des A_p-Horizonts der Auenrendzina.

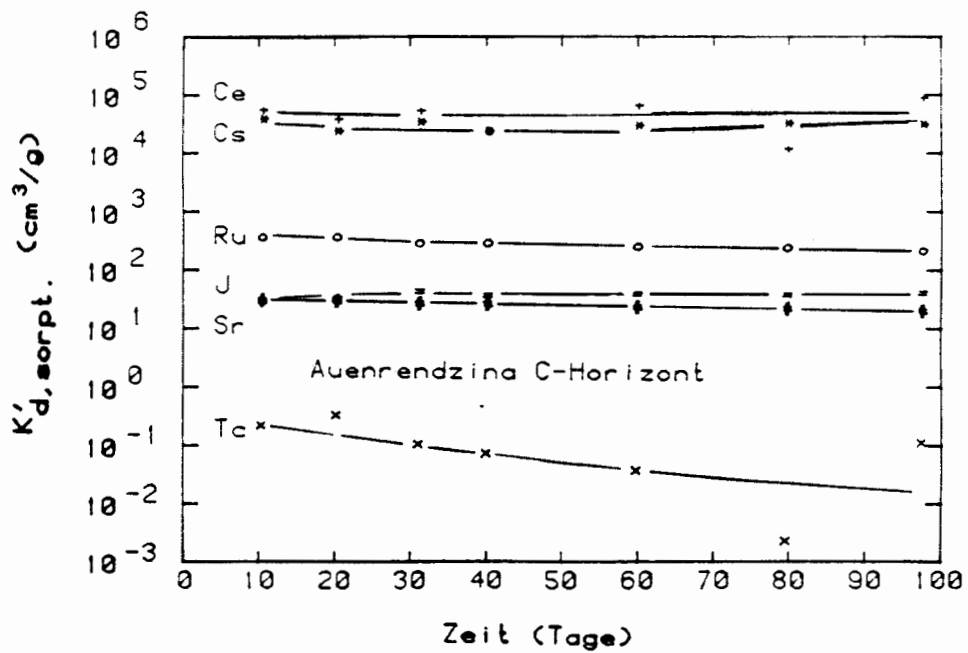


Abb. 5.1.1.8.: Zeitabhängigkeit der Sorptionskoeffizienten des C-Horizonts der Auenrendzina.

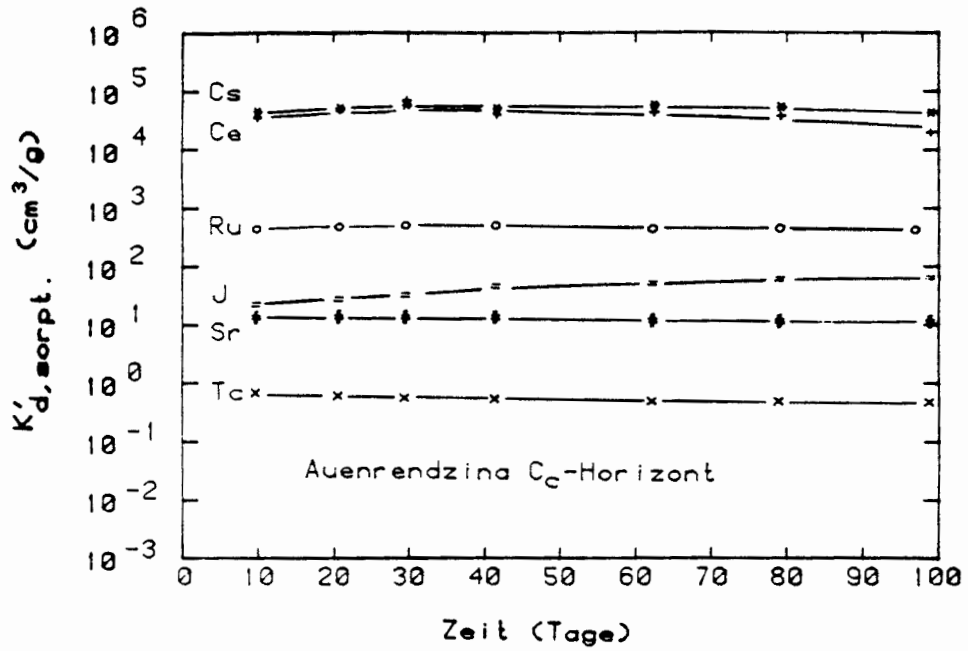


Abb. 5.1.1.9.: Zeitabhängigkeit der Sorptionskoeffizienten des C_c-Horizonts der Auenrendzina.

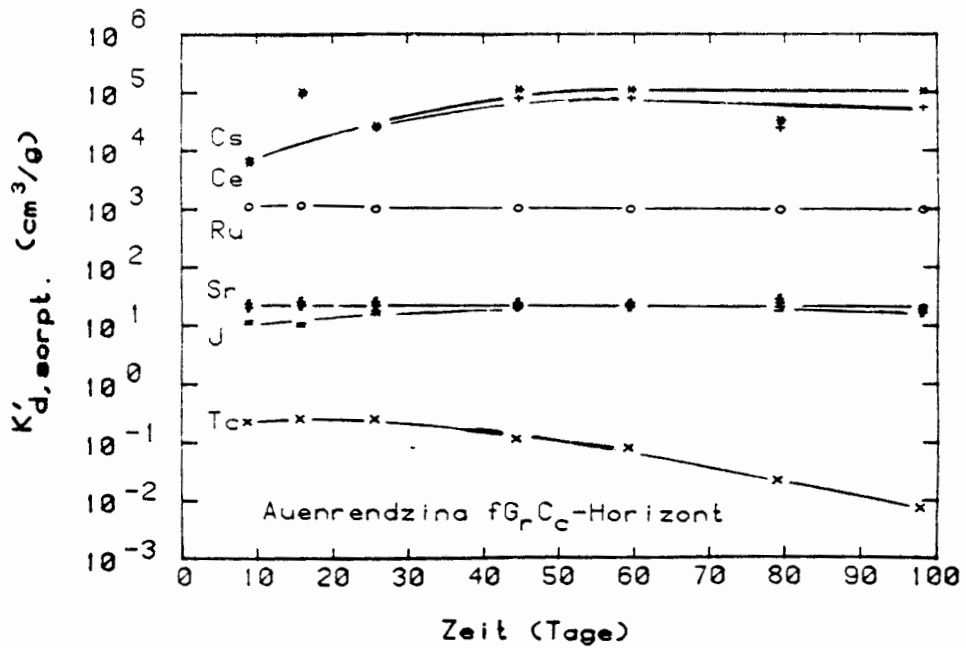


Abb. 5.1.1.10.: Zeitabhängigkeit der Sorptionskoeffizienten des fg_rC_c-Horizonts der Auenrendzina.

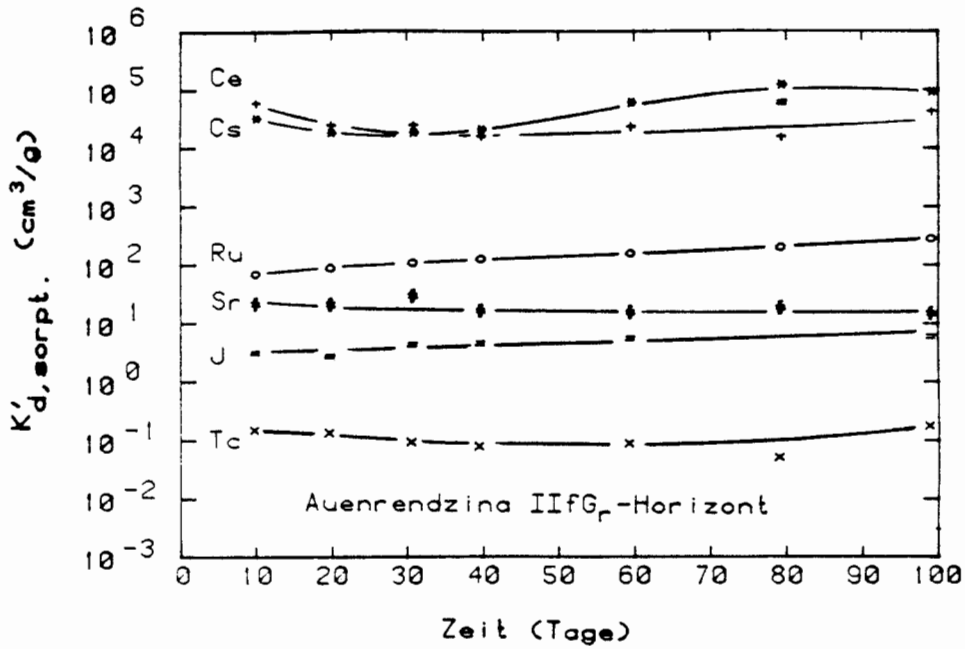


Abb. 5.1.1.11.: Zeitabhängigkeit der Sorptionskoeffizienten des IIfG_r-Horizonts der Auenrendzina.

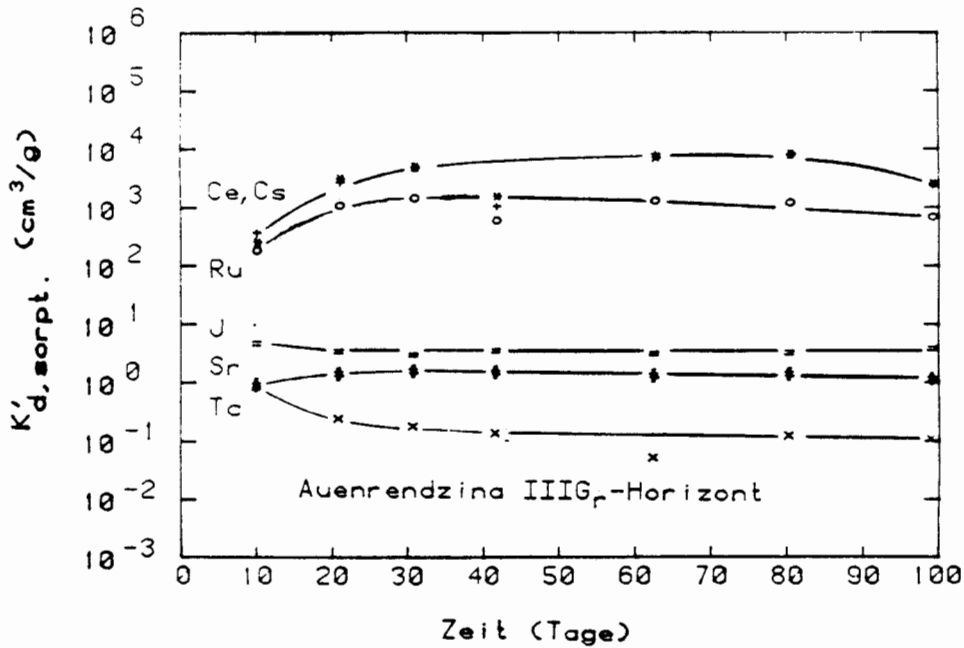


Abb. 5.1.1.12.: Zeitabhängigkeit der Sorptionskoeffizienten des IIIG_r-Horizonts der Auenrendzina.

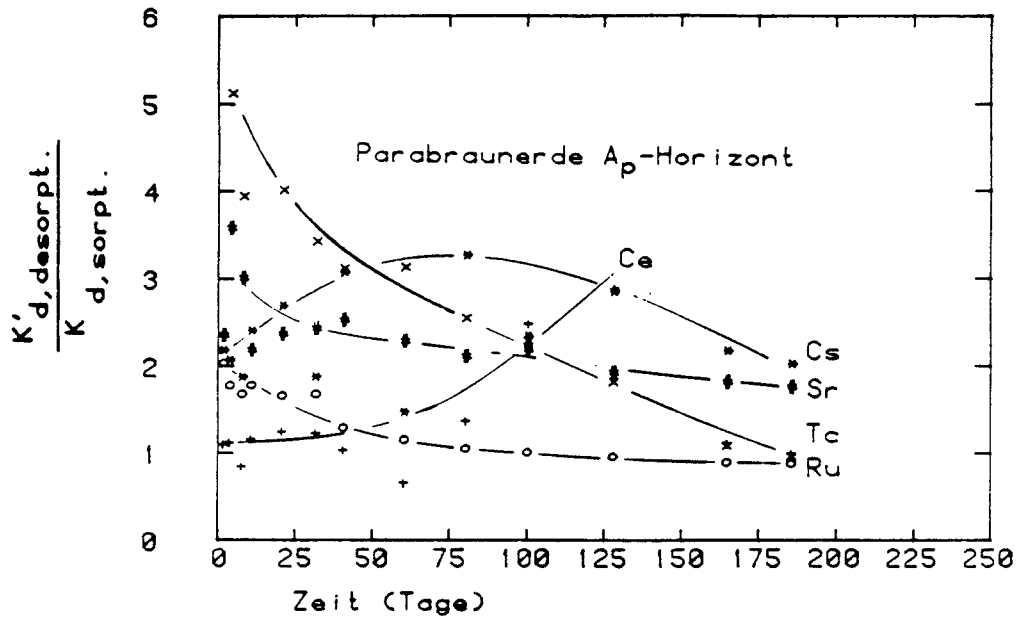


Abb. 5.1.1.13.: Zeitabhängigkeit der Verhältnisse

$K'_{d,desorpt.} / K_{d,sorpt.}$ des A_p-Horizonts der Parabraunerde.

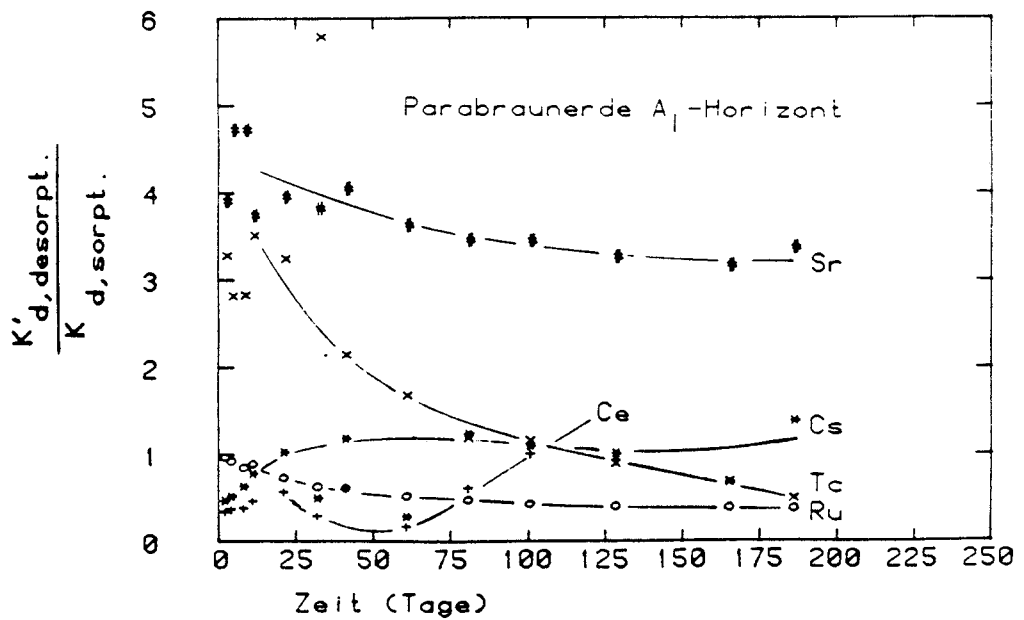


Abb. 5.1.1.14.: Zeitabhängigkeit der Verhältnisse

$K'_{d,desorpt.} / K_{d,sorpt.}$ des A₁-Horizonts der Parabraunerde. Man beachte: die Ordinatenwerte von Tc sind mit 10 zu multiplizieren.

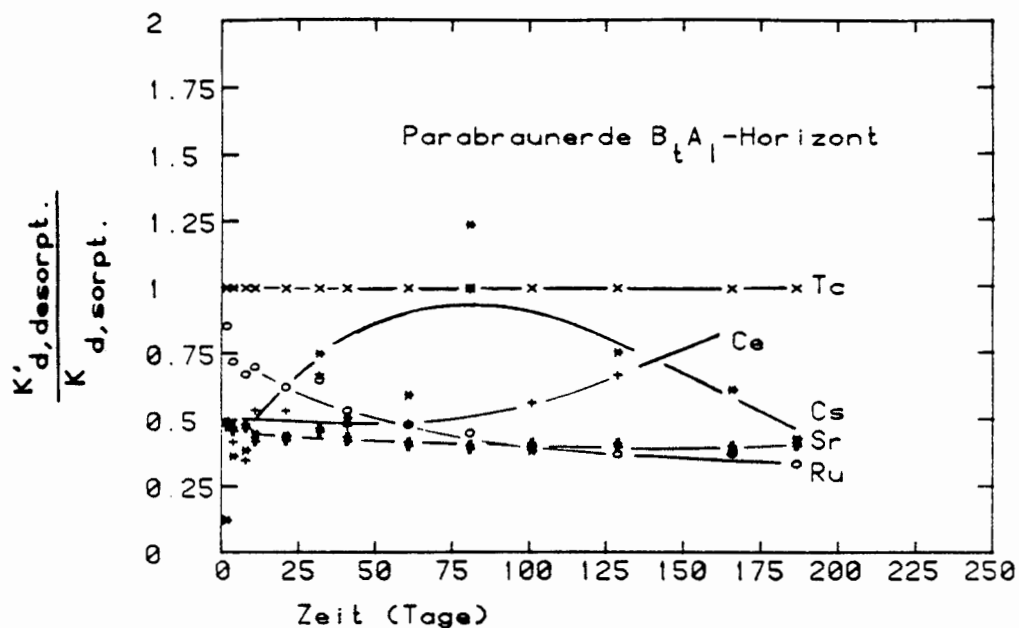


Abb. 5.1.1.15.: Zeitabhängigkeit der Verhältnisse

$\frac{K'_{d,desorpt.}}{K_{d,sorpt.}}$ des $B_t A_1$ -Horizonts der Parabraunerde. Man beachte: die Ordinatenwerte sind mit 10 zu multiplizieren.

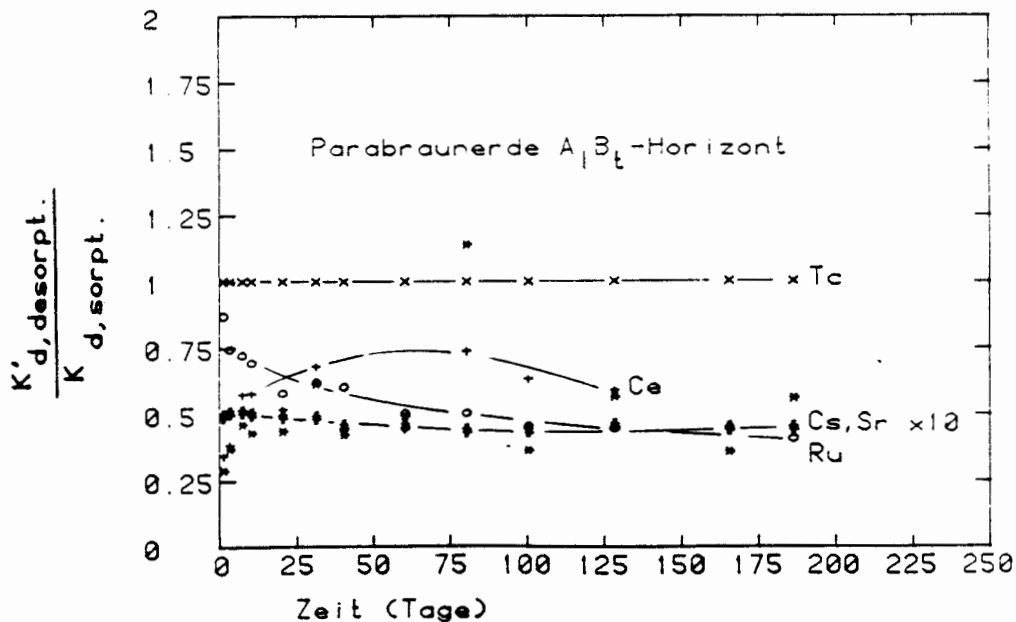


Abb. 5.1.1.16.: Zeitabhängigkeit der Verhältnisse

$\frac{K'_{d,desorpt.}}{K_{d,sorpt.}}$ des $A_1 B_t$ -Horizonts der Parabraunerde. Man beachte: die Ordinatenwerte nur von Sr sind mit 10 zu multiplizieren.

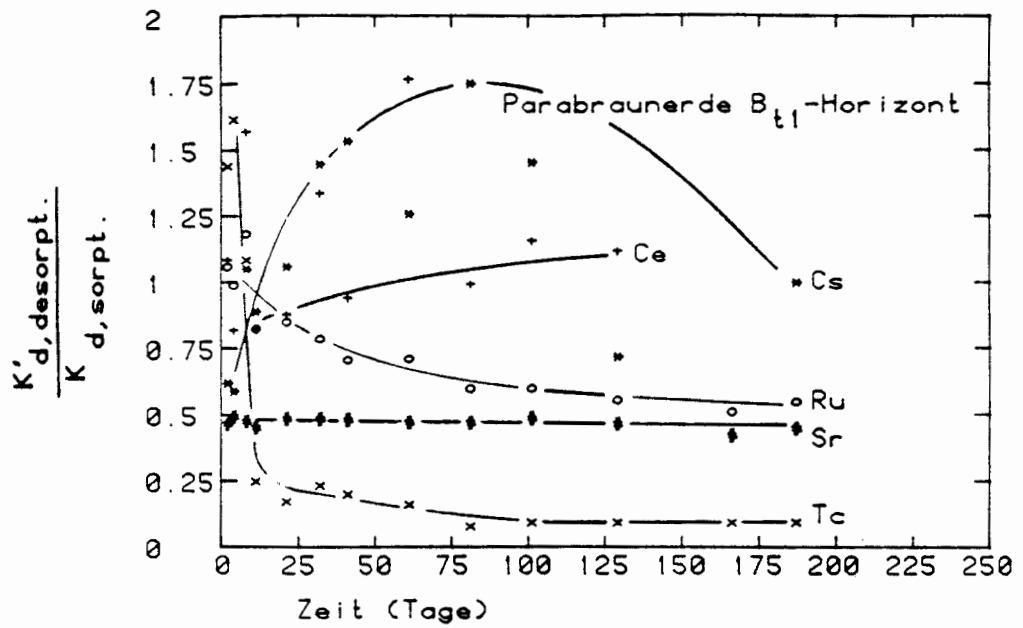


Abb. 5.1.1.17.: Zeitabhängigkeit der Verhältnisse

$K'_{d,desorpt.}/K_{d,sorpt.}$ des B_{t1} -Horizonts der Parabraunerde. Man beachte: die Ordinatenwerte von Sr sind mit 10 zu multiplizieren.

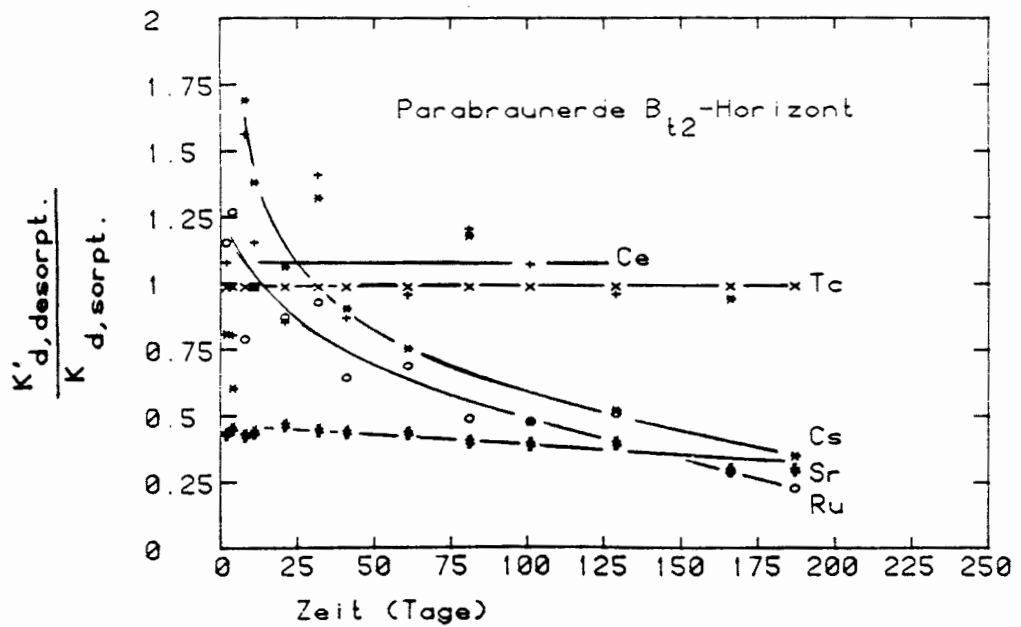


Abb. 5.1.1.18.: Zeitabhängigkeit der Verhältnisse

$K'_{d,desorpt.}/K_{d,sorpt.}$ des B_{t2} -Horizonts der Parabraunerde. Man beachte die Ordinatenwerte von Sr sind mit 10 zu multiplizieren.

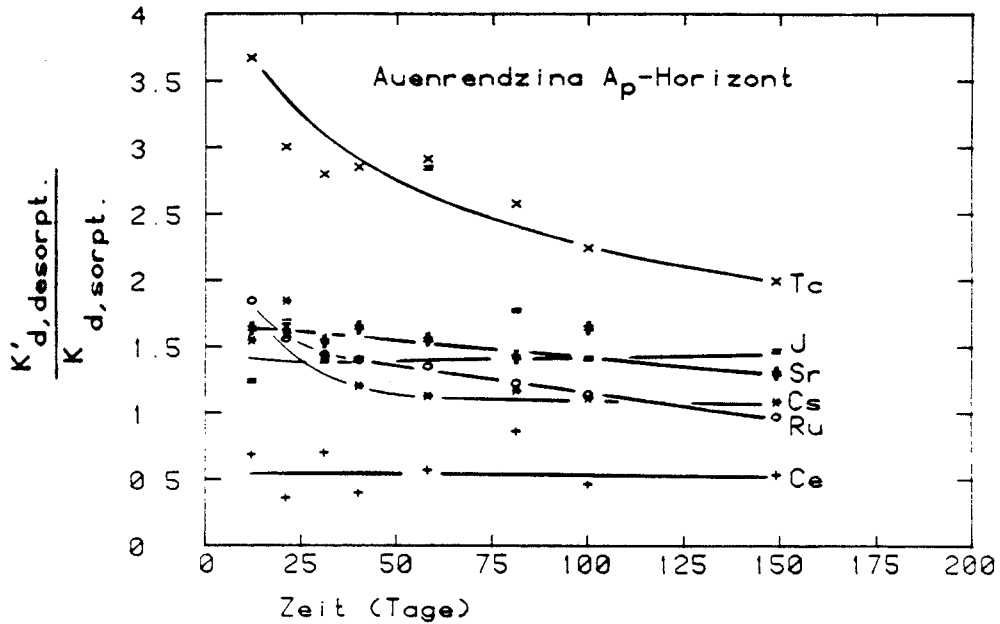


Abb. 5.1.1.19.: Zeitabhängigkeit der Verhältnisse

$K'_{d,desorpt.} / K_{d,sorpt.}$ des A_p-Horizonts
der Auenrendzina.

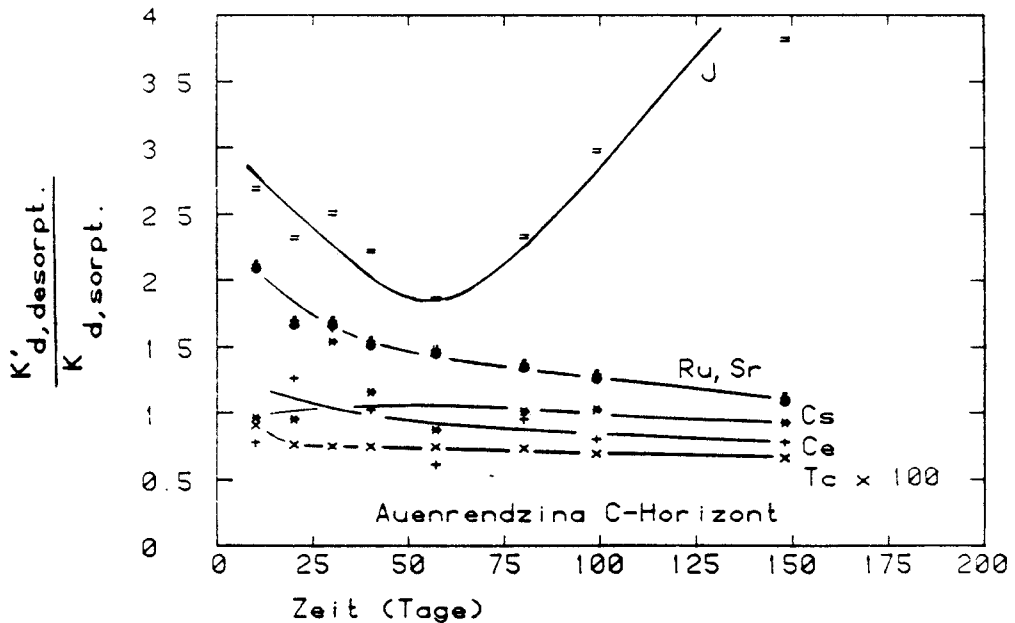


Abb. 5.1.1.20.: Zeitabhängigkeit der Verhältnisse

$K'_{d,desorpt.} / K_{d,sorpt.}$ des C-Horizonts der
Auenrendzina. Man beachte: die Ordinatenwerte
von Tc sind mit 100 zu multiplizieren.

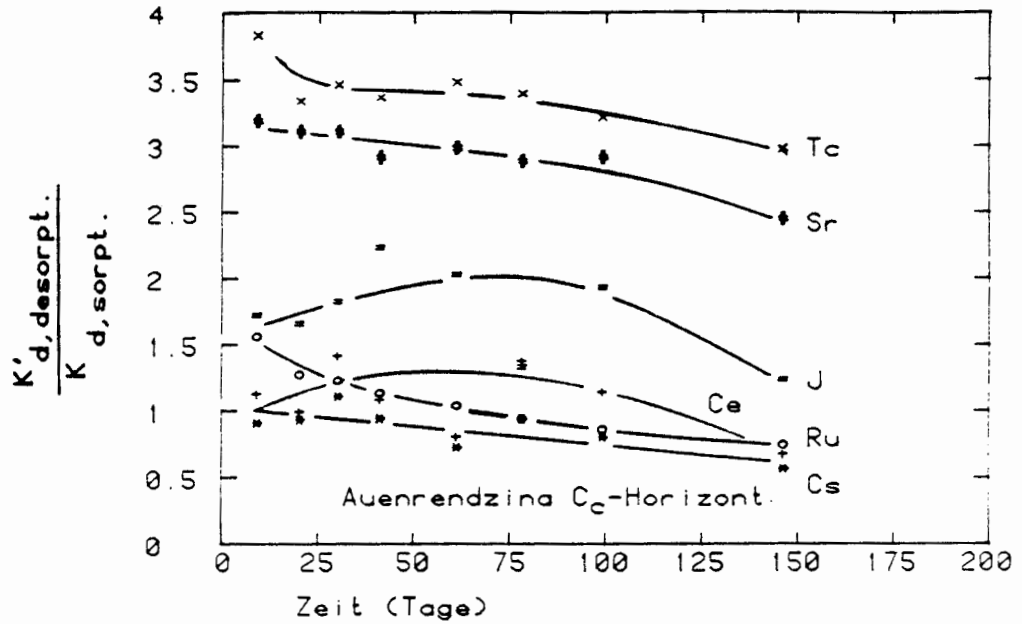


Abb. 5.1.1.21.: Zeitabhängigkeit der Verhältnisse

$K'_{d,desorpt.} / K_{d,sorpt.}$ des C_c -Horizonts
der Auenrendzina.

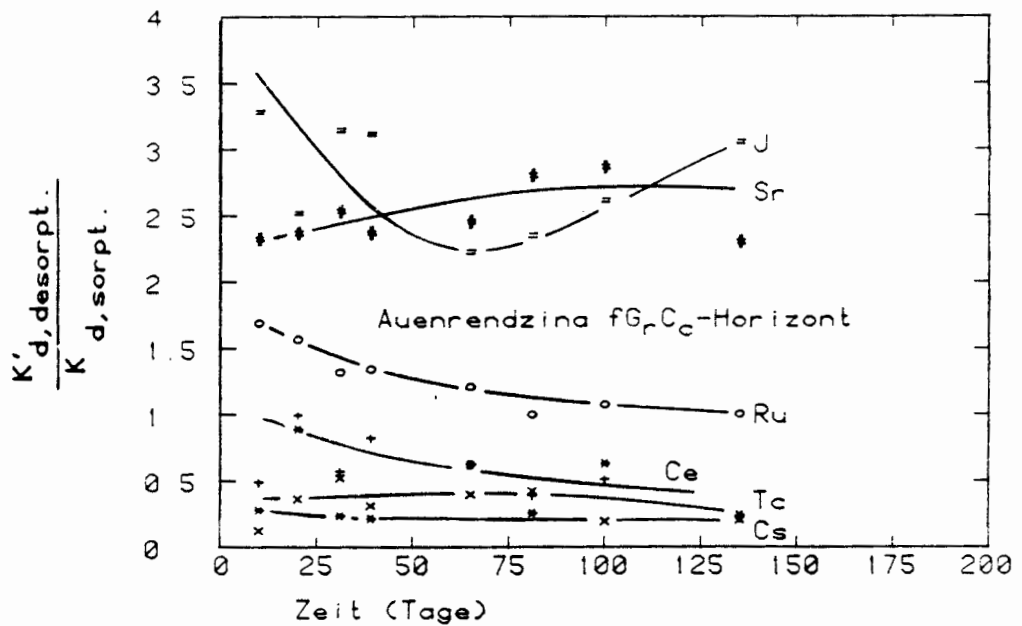


Abb. 5.1.1.22.: Zeitabhängigkeit der Verhältnisse

$K'_{d,desorpt.} / K_{d,sorpt.}$ des $fG_r C_c$ -Horizonts der
Auenrendzina.

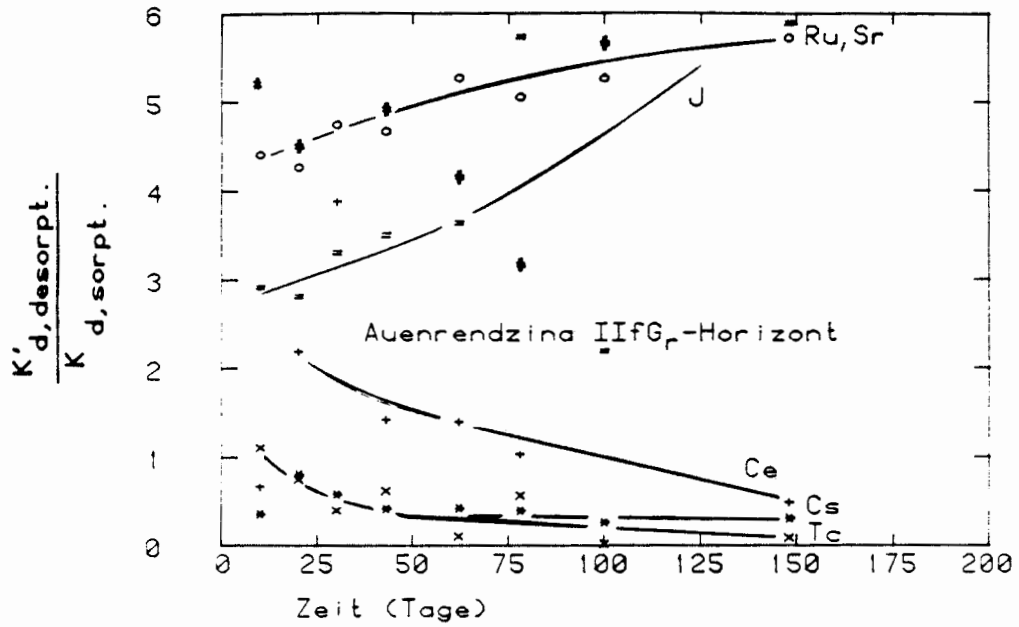


Abb. 5.1.1.23.: Zeitabhängigkeit der Verhältnisse $\frac{K'_{d,desorpt.}}{K_{d,sorpt.}}$ des IIIG_r-Horizonts der Auenrendzina.

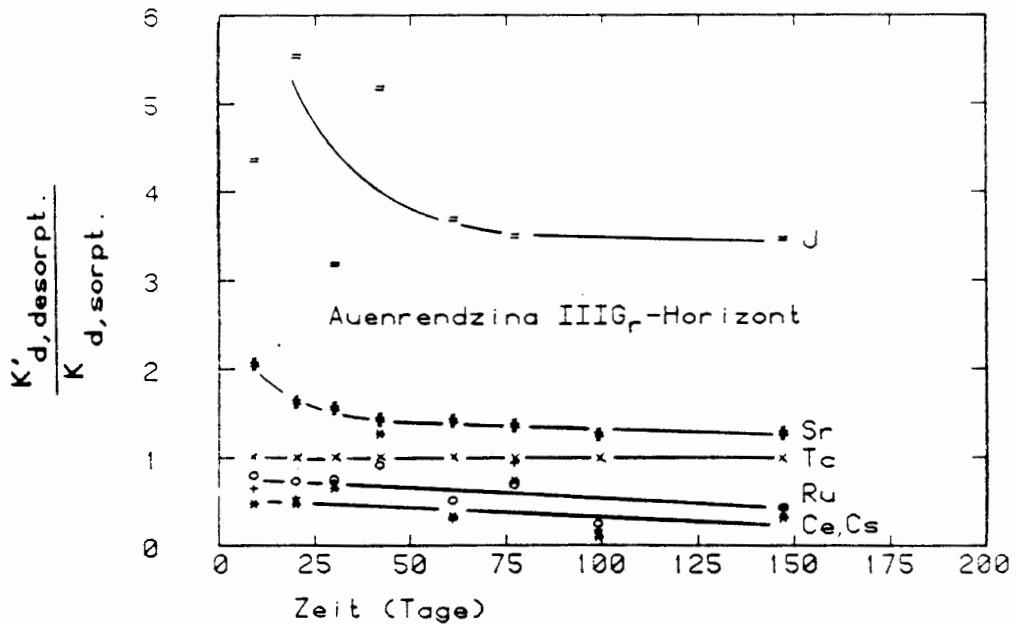


Abb. 5.1.1.24.: Zeitabhängigkeit der Verhältnisse $\frac{K'_{d,desorpt.}}{K_{d,sorpt.}}$ des IIIG_r-Horizonts der Auenrendzina.

5.1.2 Verteilungskoeffizienten nach dem Standardverfahren

Die nach dem in 4.2.3 beschriebenen Verfahren ermittelten Verteilungskoeffizienten der einzelnen Radionuklide für die Parabraunerde und die Auenrendzina sind in den Tabellen 5.1.2.1 und 5.1.2.2 angegeben mit Extremwerten von $< 0,05$ bis 10^5 .

Die in den Tabellen angegebenen Werte für das Redoxpotential und die Wasserstoffionenkonzentration wurden am Ende des Batchversuches nach 20 Tagen in der radioaktiven Lösung bestimmt.

Graphisch sind die K_d -Werte in den Abb. 5.1.2.1 und 5.1.2.2 veranschaulicht. Daraus läßt sich entnehmen, daß die K_d -Werte für ein bestimmtes Radionuklid und für einen bestimmten Boden zwar von Horizont zu Horizont etwas variieren, daß diese Schwankungen aber im allgemeinen klein sind gegenüber denjenigen, die zwischen den einzelnen Nukliden beobachtet werden. Damit läßt sich pauschalierend über alle Horizonte folgende Reihenfolge der K_d -Werte für beide Böden angeben:

$$\text{Tc} < \text{J} < \text{Sr} < \text{Ru} < \text{Cs} \approx \text{Ce} .$$

Die langsamsten Wanderungsgeschwindigkeiten lassen sich demnach für die Isotope von Cs und Ce erwarten, während Tc gegenüber dem Sickerwasser nur wenig verzögert werden sollte. Inwieweit diese Voraussage mit den Säulenversuchen übereinstimmt, wird später in Abschnitt 6 diskutiert.

Wie erwähnt, hängen die K_d -Werte eines bestimmten Radionuklids auch davon ab, welchen Bodenhorizont man betrachtet. Dies ist natürlich eine Folge der unterschiedlichen physikalisch-chemischen Eigenschaften dieser Horizonte, wie dies aus Tab. 3.3.3.1 ersichtlich ist. Eine eingehende Diskussion über diese Zusammenhänge erscheint jedoch gegenwärtig verfrüht, da die Sorptionsmechanismen der Radionuklide mit den einzelnen Bodenbestandteilen teilweise nur wenig bekannt sind.

Tabelle 5.1.2.1: K_d -Werte in cm^3/g Parabraunerde

Probenahmestelle: Eschweiler-Lohn

Horizont	Tiefe (cm)	Cs-137	Sr-85	Ce-141	Ru-103	J-131	Tc-95m	E_H (mV)	p_H
A_p	0-31	4400	22	15000	250	3	0,3	540	7,3
A_1	31-52	16000	27	26000	1000	0,2	0,05	580	7,4
$B_t A_1$	52-62	34000	29	34000	1700	0,1	0,05	580	7,2
$A_1 B_t$	62-73	35000	27	30000	2200	0,1	0,05	600	6,8
B_{t_1}	73-88	33000	30	23000	2500	0,2	0,05	610	6,7
B_{t_2}	88	52000	29	21000	3500	0,1	0,05	640	6,2
Fehler		$\pm 20\%$	$\pm 10\%$	$\pm 30\%$	$\pm 10\%$	$\pm 30\%$	$\pm 20\%$	$\pm 20\text{mV}$	$\pm 0,2$

Tabelle 5.1.2.2. : K_d -Werte in cm^3/g der Auenrendzina.

Probenahmestelle: Biblis.

Horizont	Tiefe (cm)	Cs-137	Sr-85	Ce-141	Ru-103	J-125	Tc-95m	E_H (mV)	p_H
A_p	0-20	25000	32	32000	340	32	0,3	560	8,3
C	20-31	21000	26	33000	360	28	0,3	570	8,3
C_c	31-56	47000	13	45000	500	26	0,7	560	8,2
$fG_r C_c$	56-88	90000	22	81000	1100	16	0,3	580	8,1
$II fG_r$	88-128	16000	19	22000	90	2,5	0,1	560	8,2
$III G_r$	128-132	2800	1,3	2400	1100	3,2	0,3	560	8,2
Fehler		$\pm 30\%$	$\pm 10\%$	$\pm 40\%$	$\pm 10\%$	$\pm 30\%$	$\pm 20\%$	$\pm 20\text{mV}$	$\pm 0,1$

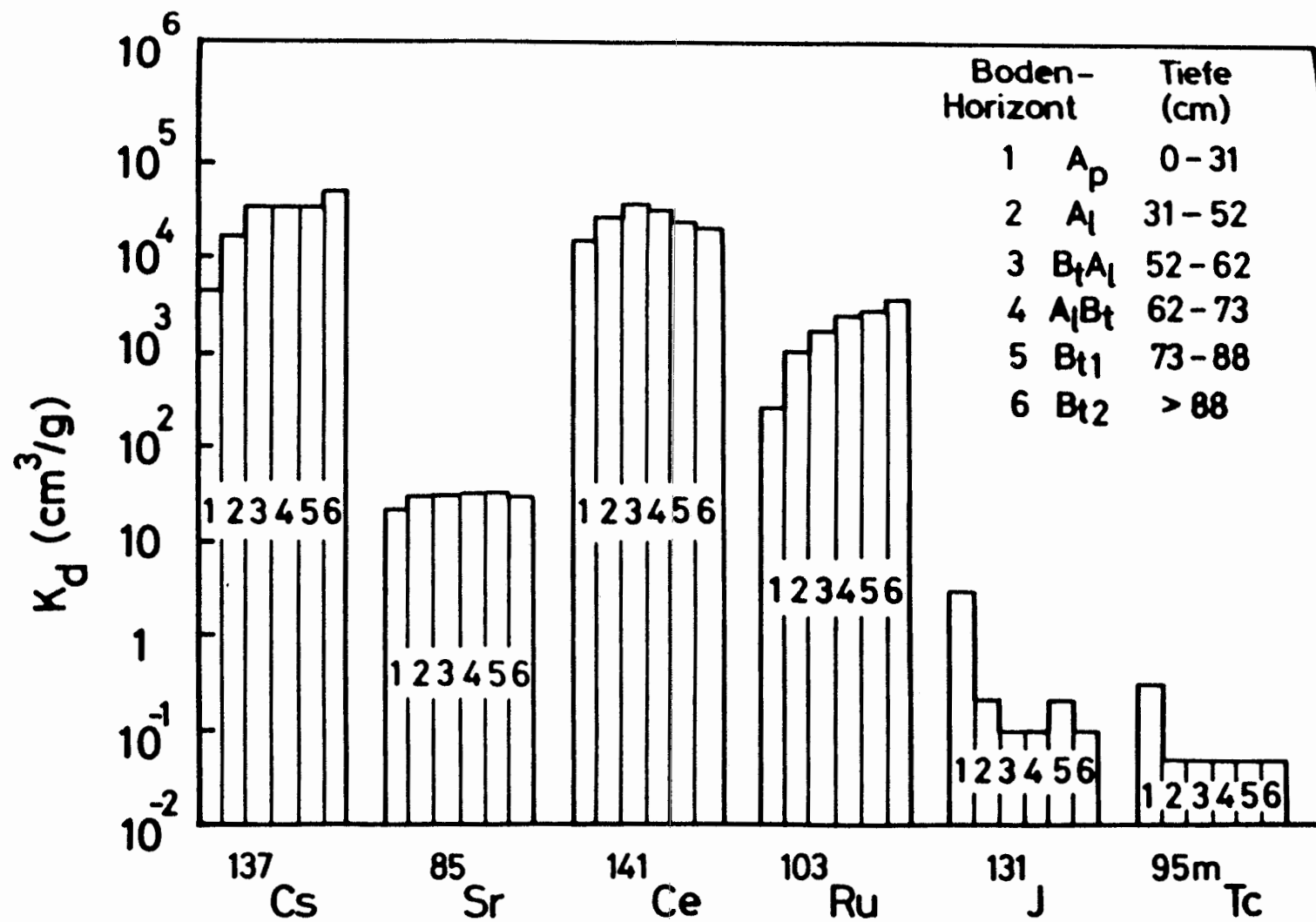


Abb. 5.1.2.1 Verteilungskoeffizienten der Radionuklide in den verschiedenen Horizonten der Parabraunerde nach dem Batch-Verfahren

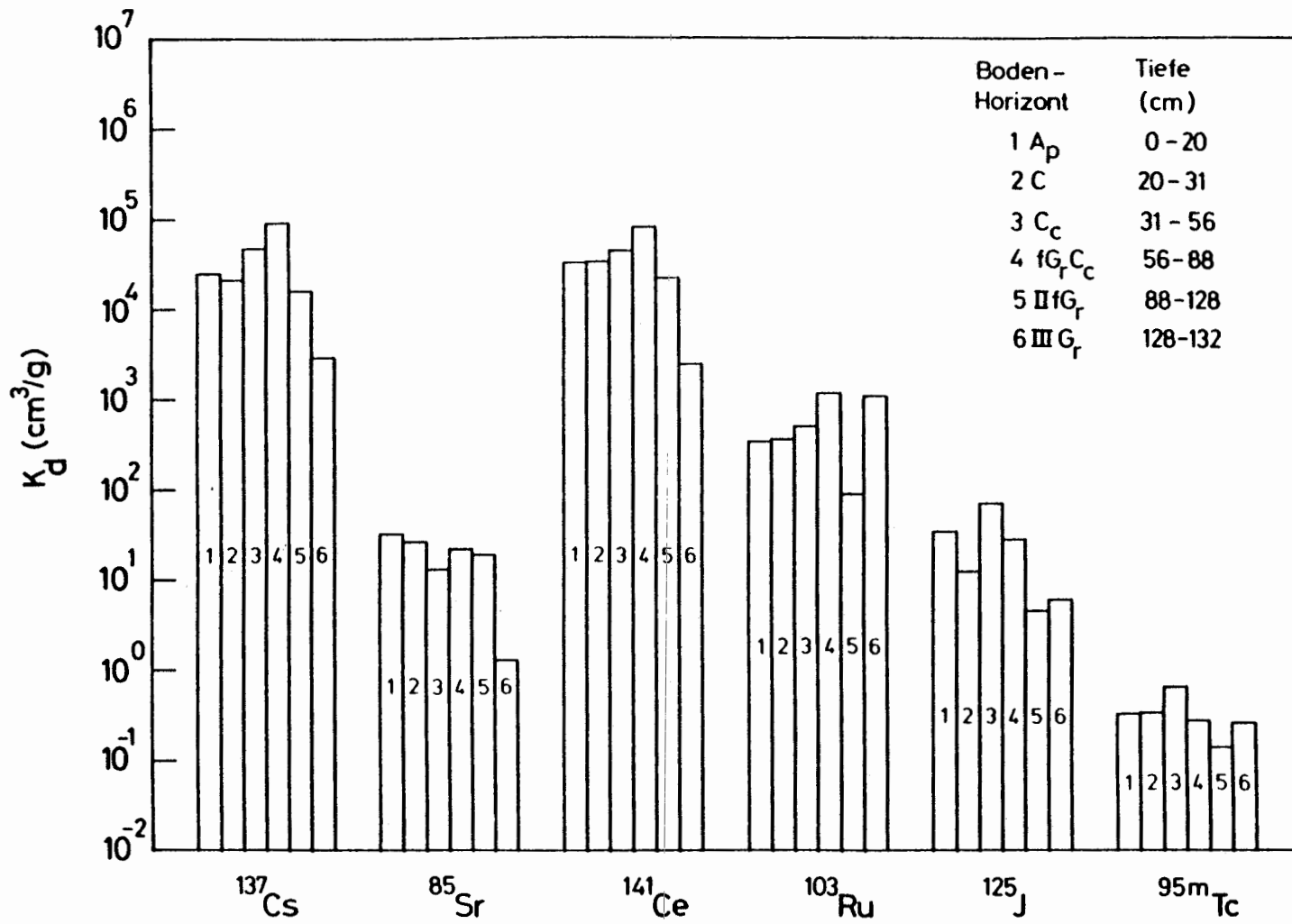


Abb. 5.1.2.2 Verteilungskoeffizienten der Radionuklide in den verschiedenen Horizonten der Auenrendzina nach dem Batch-Verfahren

5.1.3. Einfluß von Kalium- und Kalziumionen in der Bodenlösung auf die Verteilungskoeffizienten

Der Einfluß verschieden hoher Kalium-Konzentrationen in der Bodenlösung auf die K_d -Werte von Cs-137, Ce-141, Ru-103, Sr-85, J-131 und Tc-95m ist für die A_p -Horizonte der Parabraunerde in Abb. 5.1.3.1 und der Auenrendzina in Abb. 5.1.3.2 gezeigt. Um eine Aussage über die Streuung machen zu können, wurden jeweils eine Vierfachbestimmung durchgeführt. Die Ergebnisse zeigen, daß die K_d -Werte mit steigender K-Konzentration bei beiden Bodentypen für Cs-137 und Sr-85 stark abnehmen. Bei der Parabraunerde nehmen bei sehr hohen K-Konzentration die K_d -Werte von J-131 und Ce-141 ab. Dies deutet darauf hin, daß Cs, Sr und Ce durch einen Kationenaustauschprozess gebunden werden. Für Ru und Tc, die ursprünglich als Anionen vorliegen, ist die K-Abhängigkeit sehr gering. Die K_d -Werte von Jod nehmen erst bei höheren Konzentrationen von KNO_3 ab. Bei der Auenrendzina ist der Einfluß steigender Kaliumnitratkonzentrationen auf Ce, Ru, J und Tc sehr gering. Der Einfluß verschieden hoher Kalziumionenkonzentrationen in der Bodenlösung auf die K_d -Werte derselben Radionuklide ist für die gleichen Bodenhorizonte in den Abb. 5.1.3.3 und 5.1.3.4 gezeigt. Die Ergebnisse zeigen, daß bei beiden Böden die K_d -Werte mit steigender Ca-Konzentration für Ce, Cs und Sr stark abnehmen, während Ru und Tc nur sehr gering beeinflusst werden. Im Vergleich zur Kaliumkonzentrationsabhängigkeit wird der K_d -Wert des Jods durch steigende Kalzium- und damit Nitrationenkonzentration bei der Auenrendzina merklich niedriger, während er bei der Parabraunerde nur sehr schwach beeinflusst wird. Die Nuklide Ruthenium und Technetium werden unter aeroben Bedingungen von Boden möglicherweise nicht durch einen Ionenaustauschmechanismus gebunden.

Eine mineralische Düngung mit hohem Kalziumsgehalt wird daher bei beiden Böden die Wanderungsgeschwindigkeit von Ce, Cs und Sr merklich vergrößern, beim Jod jedoch erst bei höheren Düngergaben. Bei den Elementen Ru und Tc ist ein geringer Einfluß zu erwarten.

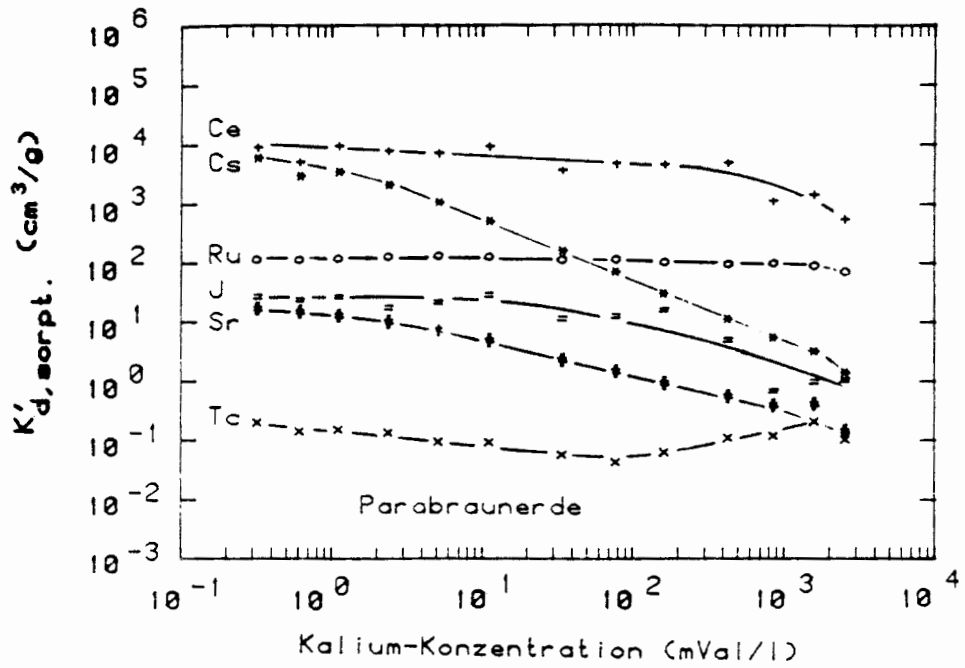


Abb. 5.1.3.1.: Einfluß von Kaliumionen in der Bodenlösung auf die Verteilungskoeffizienten im A_p-Horizont der Parabraunerde.

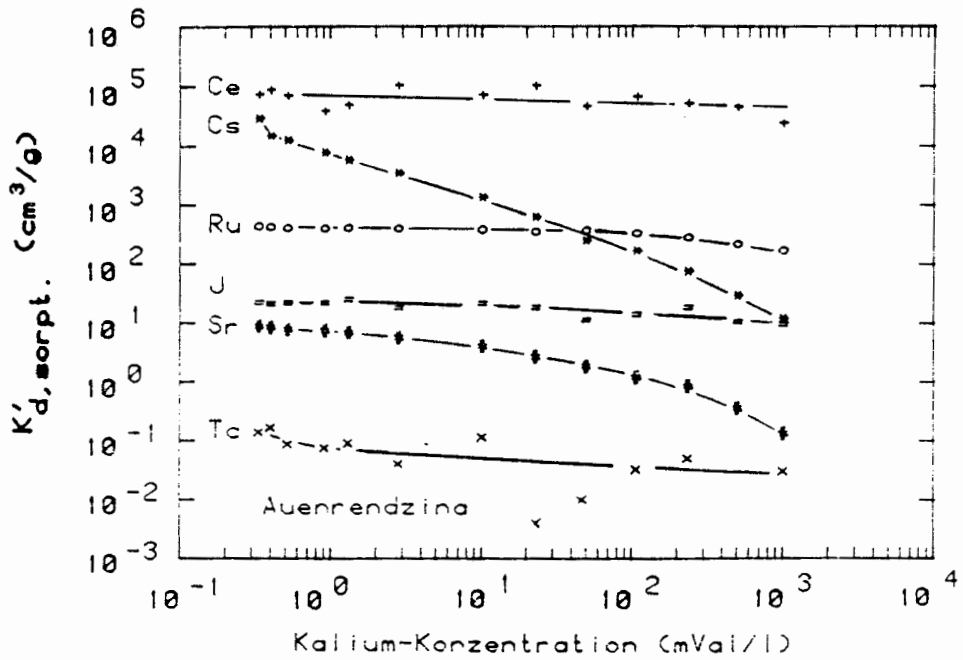


Abb.: 5.1.3.2.: Einfluß von Kaliumionen in der Bodenlösung auf die Verteilungskoeffizienten im A_p-Horizont der Auenrendzina.

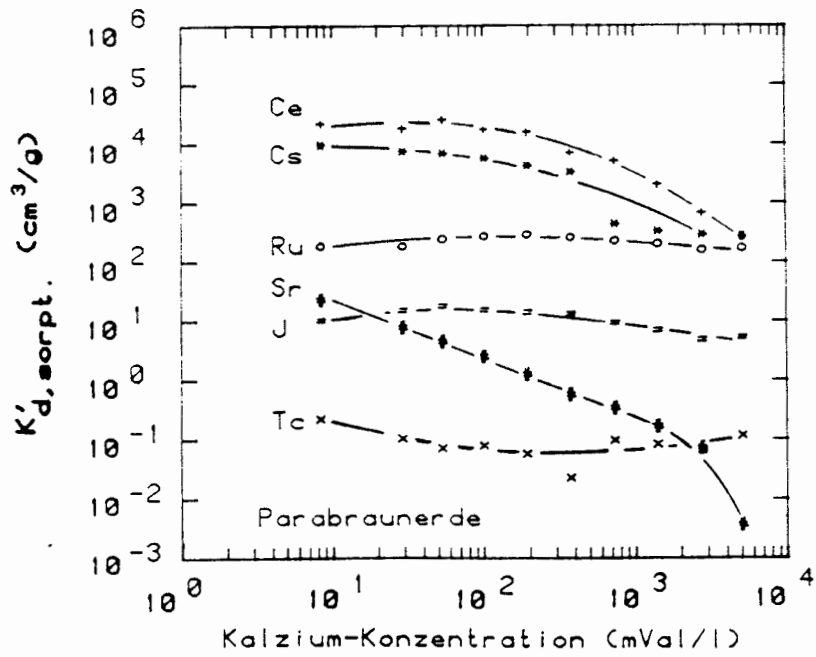


Abb. 5.1.3.3.: Einfluß von Kalziumionen in der Bodenlösung auf die Verteilungskoeffizienten im A_p -Horizont der Parabraunerde.

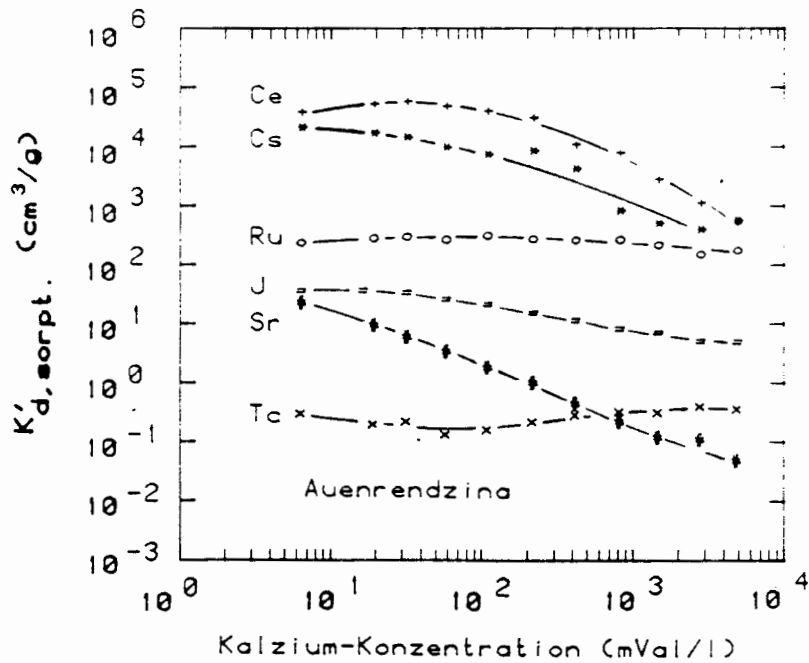


Abb.: 5.1.3.4.: Einfluß von Kalziumionen in der Bodenlösung auf die Verteilungskoeffizienten im A_p -Horizont der Auenrendzina.

5.2 Säulenversuche

5.2.1 Hydrodynamische Kenngrößen der Bodensäulen

Die hydrodynamischen Kenngrößen der Säulen wurden aus den Elutionskurven des als "idealer" Tracer eingesetzten Tritiums bestimmt. Die über einen Zeitraum von ca. 600 Tagen gemessenen Tritium-Konzentrationen im Sickerwasser wurden durch Elutionskurven angenähert, die mit dem in 4.3.4.2 dargestellten numerischen Modell für den Fall $R_d = 1$ bzw. $K_d = 0$ berechnet wurden.

Dabei zeigte sich, daß einige Säulen für die Untersuchungen zur Ausbreitung von Radionukliden ungeeignet waren. Als Beispiel ist in Abb. 5.2.1.1 die Elutionskurve der Säule E4 (Parabraunerde Eschweiler) wiedergegeben. Der steile Anstieg der Tritium-Konzentration innerhalb weniger Wochen und der sehr langsame Konzentrationsabfall sind nicht mit einer geschlossenen Kurve nach dem Modell 4.3.4.2 anzunähern. Als Ursachen kommen z.B. Risse im Boden und Verformungen des Bodenmonolithen in Frage.

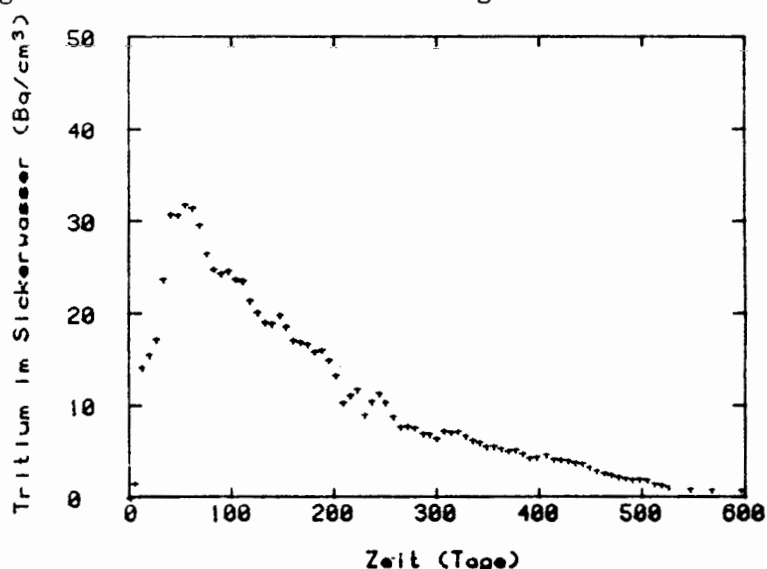


Abb. 5.2.1.1 Tritium-Konzentration im Sickerwasser der Säule E4

Nach dem Ausscheiden der unbrauchbaren Säulen verblieben für beide Böden je drei Säulen. Die Sickerwasserdaten dieser Säulen sind in Tabelle 5.2.1.1 zusammengestellt. Während die Filtergeschwindigkeit der Parabraunerde deutlich größer ist als die der Auenrendzina, liegen bei beiden Böden die (basischen) pH-Werte und die positiven E_h -Werte näher beieinander. Die Leitfähigkeit schwankt beträchtlich von Säule zu Säule.

Boden	Auenrendzina				Parabraunerde			
Säule	B2	B4	B6	Mittel	E2	E5	E6	Mittel
Filtergeschwindigkeit (10^{-8} m/s)	1,5	1,5	1,0	1,3	1,9	1,9	2,0	1,9
pH	8,2	8,2	8,1	8,2	8,4	8,0	8,7	8,4
E_h (mV)	460	470	480	470	510	550	530	530
Leitfähigkeit [μ S/cm]	340	520	800	530	380	240	420	410

Tabelle 5.2.1.1 Physikalisch-chemische Daten der Säulen-Eluate
Säulenquerschnitt: 0.07 m^2

Die Tritium-Kurven der Säulen sind in den Abb. 5.2.1.2 und 5.2.1.3 mit den berechneten Elutionskurven zu sehen. Die hydrodynamischen Parameter sind in der Tabelle 5.2.1.2 zusammengefaßt. Wie die Filtergeschwindigkeit ist auch die Abstandsgeschwindigkeit in der Parabraunerde größer als in der Auenrendzina. Da der longitudinale Dispersionskoeffizient (ebenso wie der volumetrische Wassergehalt) in beiden Böden ähnlich ist, ist die Dispersionslänge in der Auenrendzina größer als in der Parabraunerde.

Boden	Auenrendzina				Parabraunerde			
Säule	B2	B4	B6	Mittel	E2	E5	E6	Mittel
Säulenlänge (m)	0,76	0,72	0,77		0,69	0,74	0,81	
Abstandsgeschwindigkeit (10^{-8} m/s)	3,8	3,9	2,7	3,4	5,3	5,6	5,1	5,3
Longitudinaler Dispersionskoeffizient (10^{-9} m ² /s)	4,1	3,1	2,3	3,2	2,1	3,5	2,7	2,7
Dispersionslänge (m)	0,11	0,08	0,09	0,09	0,04	0,06	0,05	0,05
volumetrischer Wassergehalt (m ³ /m ³)	0,40	0,37	0,37	0,38	0,35	0,34	0,39	0,36
Wasserverdunstung (%)	14	17	43		16	14	12	

Tabelle 5.2.1.2 Die hydrodynamischen Kenngrößen der Säulen

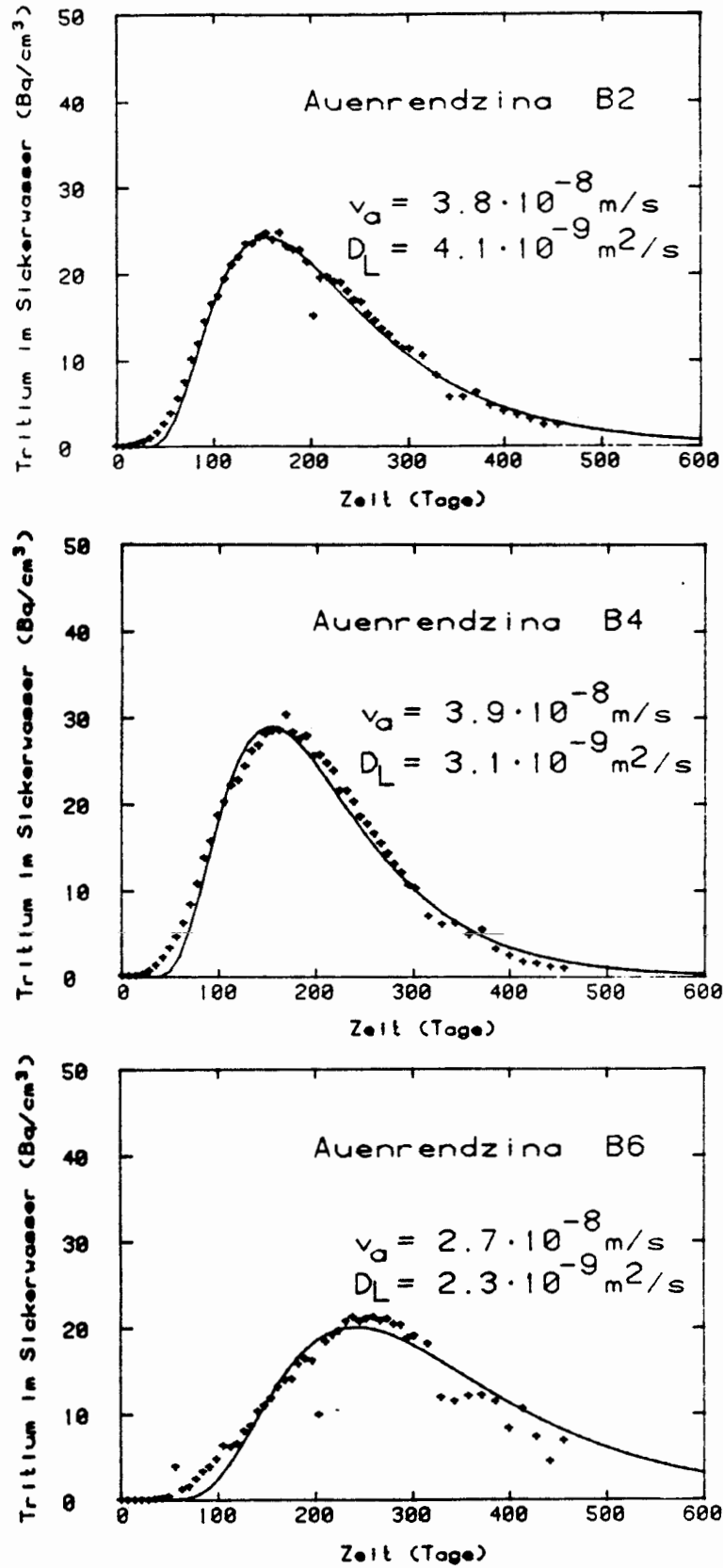


Abb. 5.2.1.2 Bestimmung der Abstandsgeschwindigkeit v_a des Sickerwassers und des longitudinalen Dispersionskoeffizienten D_L bei den Säulen der Auenrendzina durch Anpassung berechneter Elutionskurven (durchgezogen) an die Meßwerte (+)

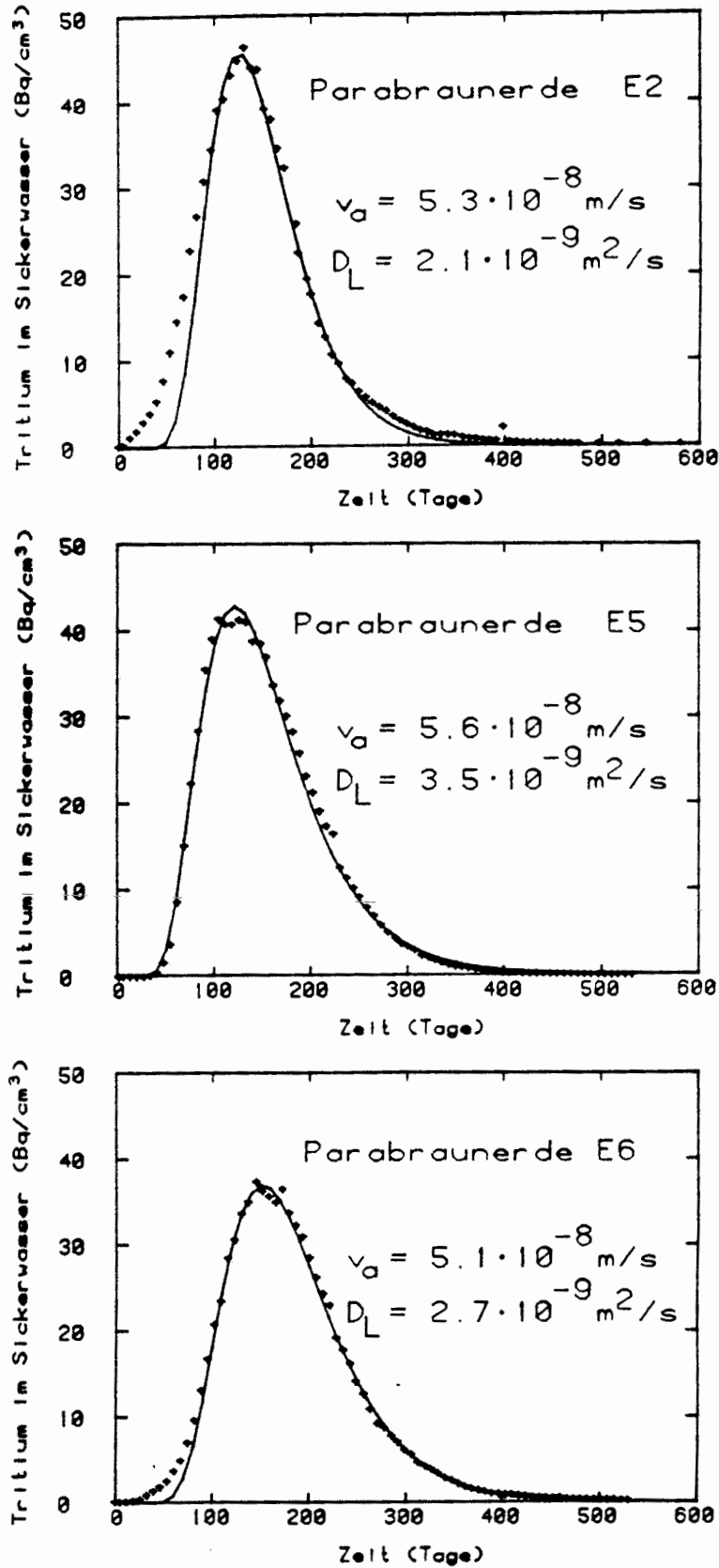


Abb. 5.2.1.3 Bestimmung der Abstandsgeschwindigkeit v_a des Sickerwassers und des longitudinalen Dispersionskoeffizienten D_L bei den Säulen der Parabraunerde durch Anpassung berechneter Elutionskurven (durchgezogen) an die Meßwerte (+)

5.2.2 Die Retardationsfaktoren

Die Retardationsfaktoren R_d der Radionuklide wurden mit den in Tab. 5.2.1.2 aufgeführten hydrodynamischen Parametern durch Kurvenanpassung an die gemessene Tiefenverteilung der Nuklide in den Säulen gewonnen (siehe 4.3.4). Es zeigte sich, daß mit Ausnahme von Tc-95m alle Radionuklide so langsam wandern, daß sie während des Versuchszeitraums im obersten Horizont der beiden Böden verbleiben. Deshalb konnten auch nur die R_d -Werte der Radionuklide für die A_p -Horizonte ermittelt werden.

Beispiele für die Kurvenanpassung geben die Abb. 5.2.2.1 bis 5.2.2.4. Die experimentell bestimmten Tiefenverteilungen der Nuklid-Aktivitäten sind in den Abbildungen als Balkendiagramme dargestellt, wobei die Fehlerbereiche (in der Regel $\pm 20\%$, siehe 4.4.2) schraffiert sind. Die Aktivitäten sind stets auf die Aufgabeaktivitäten bezogen. Die den Meßwerten entsprechenden theoretischen Werte, die mit dem in 4.3.4 erläuterten numerischen Modell berechnet wurden, sind in den Abbildungen mit Strichen verbunden.

Die Radionuklide Cs-137 und Ce-139 haben hohe R_d -Werte (Abb. 5.2.2.1 und 5.2.2.2), besonders in der Parabraunerde. Die Aktivität der beiden Radionuklide verblieb bis zum Ende des Versuchszeitraums in den ersten 5 bis 6 cm des A_p -Horizonts. Für Ce-139 ist $R_d = 20000$ bei der Parabraunerde ein unterer Schätzwert! Etwas schneller wanderte Sr-85 (Abb. 5.2.2.3). Daß hier wie bei den anderen Nukliden zu verschiedenen Zeiten derselbe R_d -Wert zur Kurvenanpassung genommen werden konnte, deutet darauf hin, daß die Sorption der Nuklide überwiegend reversibel verlief.

Das als Chlorokomplex aufgegebene Ru-106 drang im Gegensatz zu Cs, Sr und Ce am Tage der Nuklidaufgabe einige Zentimeter in den Boden ein, ehe es absorbiert wurde. Zu Beginn der Ausbreitung lag also bereits eine Tiefenverteilung vor, was bei der R_d -Wert-Berechnung selbstverständlich berücksichtigt wurde. Wie aus Abb. 5.2.2.4 hervorgeht, wanderte Ru-106 sehr langsam mit R_d -Werten um 10000. Vermutlich gilt dieser Wert für eine gegenüber der Aufgabelösung veränderte chemische Form von Ru-106.

Als schwer zu beschreibendes Radionuklid erwies sich Tc-95m. Bei der Aufgabe drang es noch ausgeprägter als Ru-106 in den Boden ein, verblieb dann aber bis zum Ende des Versuchszeitraums in beträchtlichem Maß in den Säulen (Tab. 5.2.2.1). Andererseits erschien Tc-95m in zum Teil erheblichen Mengen

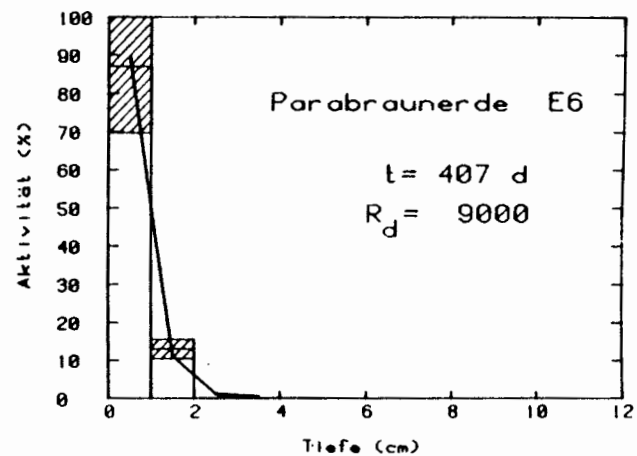
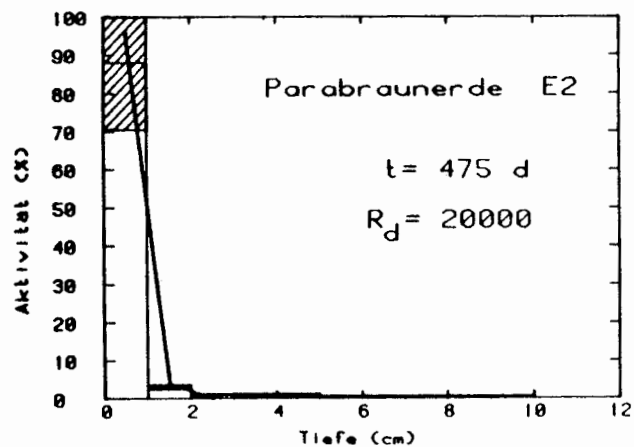
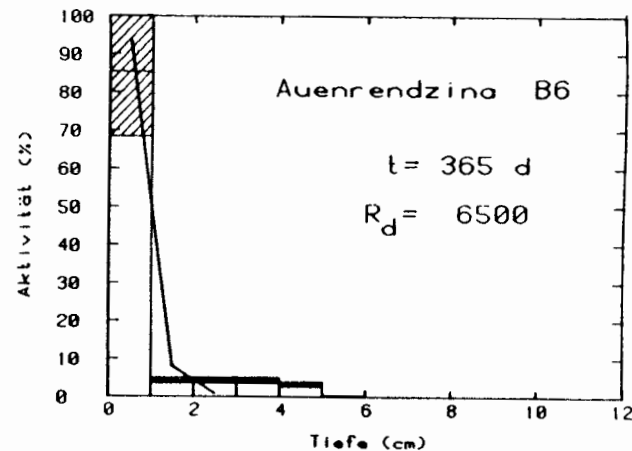
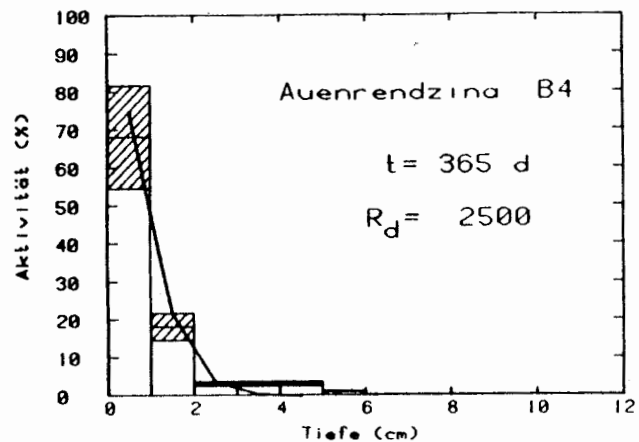


Abb. 5.2.2.1 Bestimmung des Retardationsfaktors R_d von Cs-137 durch Anpassung berechneter Tiefenverteilungen (durchgezogene Kurven) an die Meßwerte (schraffierter Fehlerbereich)
 t = Zeit in Tagen nach Nuklidauflage

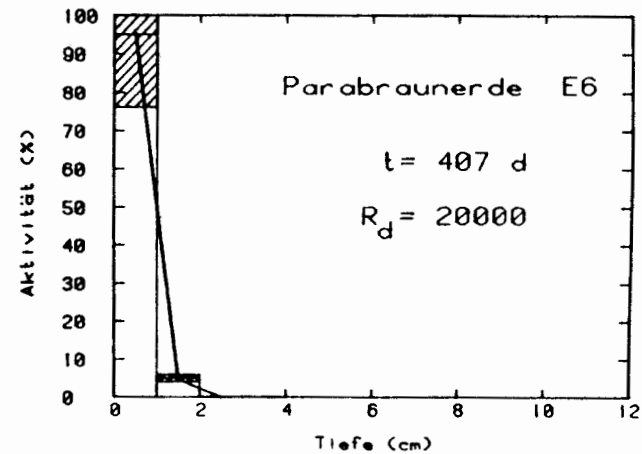
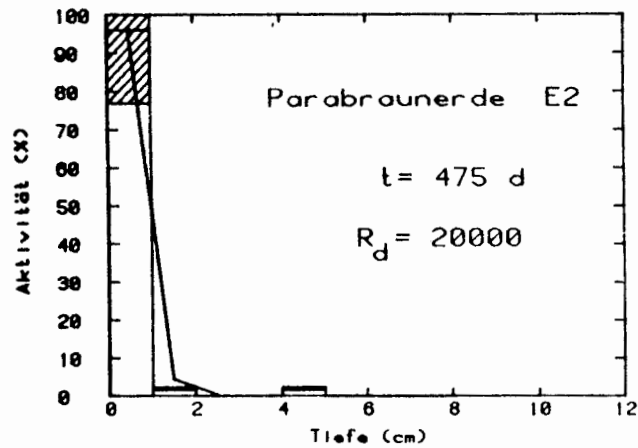
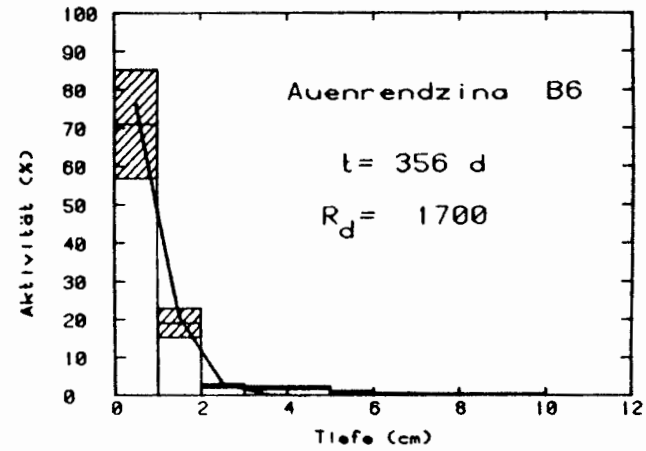
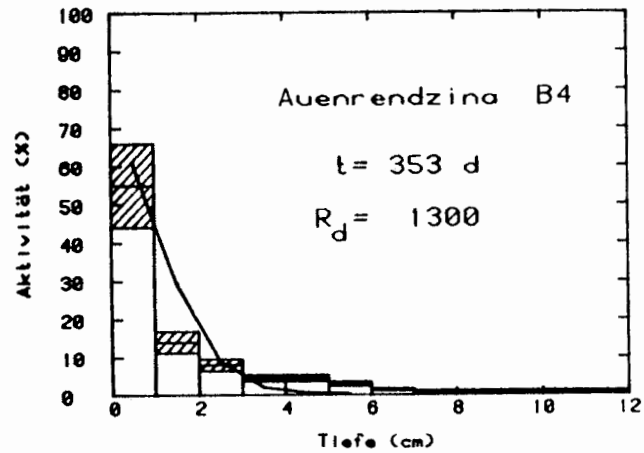


Abb. 5.2.2.2 Bestimmung des Retardationsfaktors R_d von Ce-139 durch Anpassung berechneter Tiefenverteilungen (durchgezogene Kurven) an die Meßwerte (schraffierter Fehlerbereich)
 t = Zeit in Tagen nach Nuklidauflage

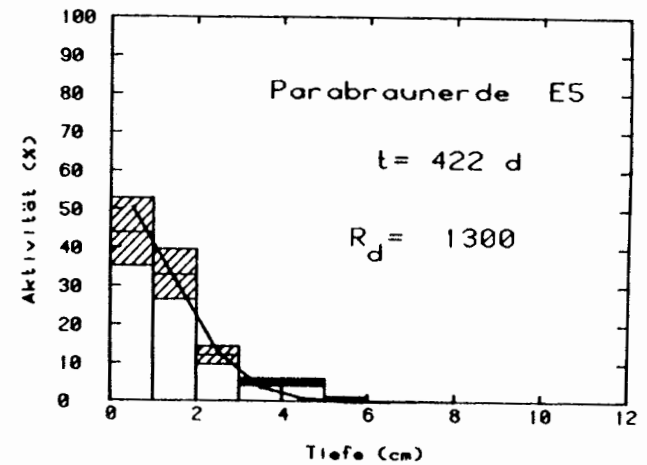
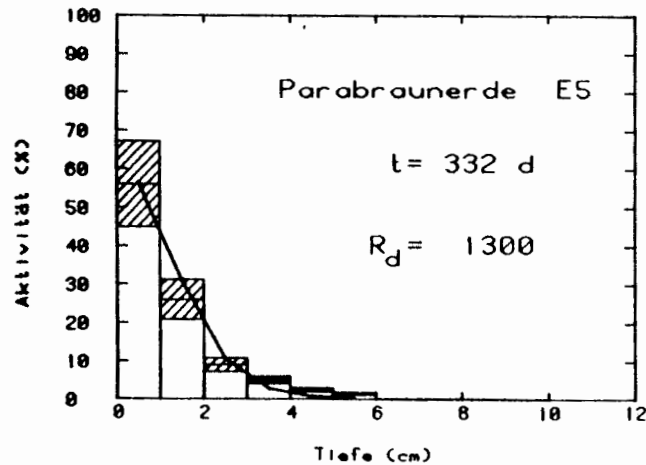
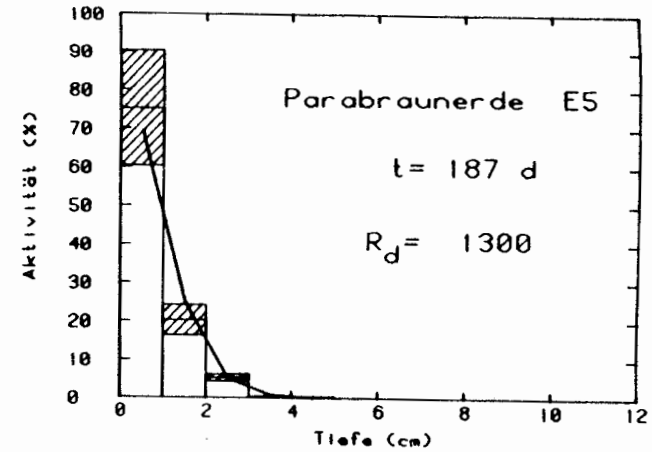
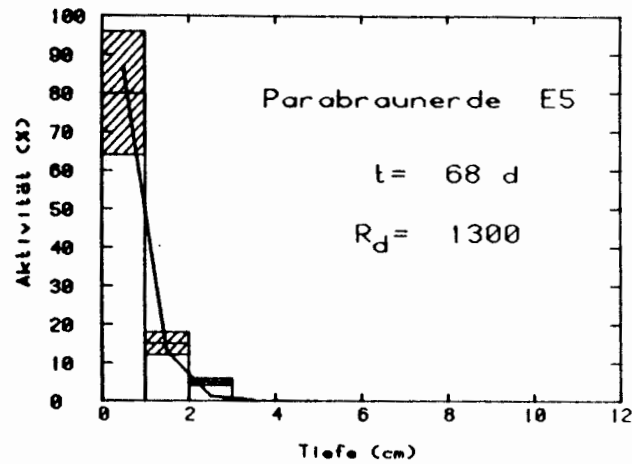


Abb. 5.2.2.3 Bestimmung des Retardationsfaktors $R_d = 1300$ von Sr-85 bei der Parabraunerde durch Anpassung berechneter Tiefenverteilungen (durchgezogene Kurven) an die Meßwerte (schraffierter Fehlerbereich)

t = Zeit in Tagen nach Nuklidauflage

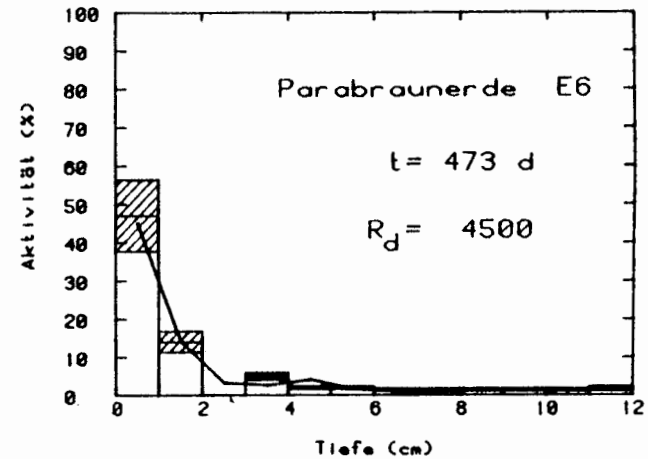
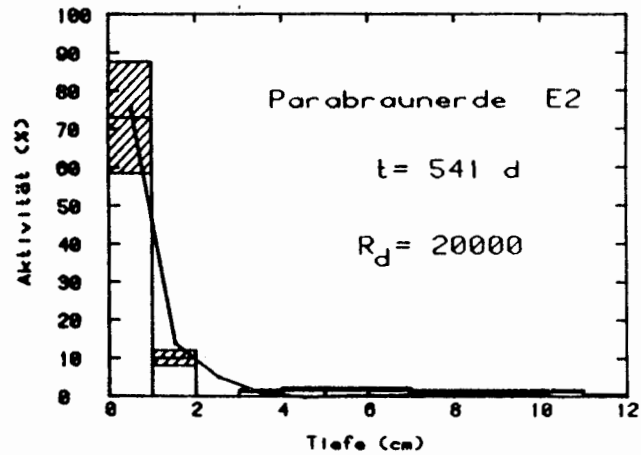
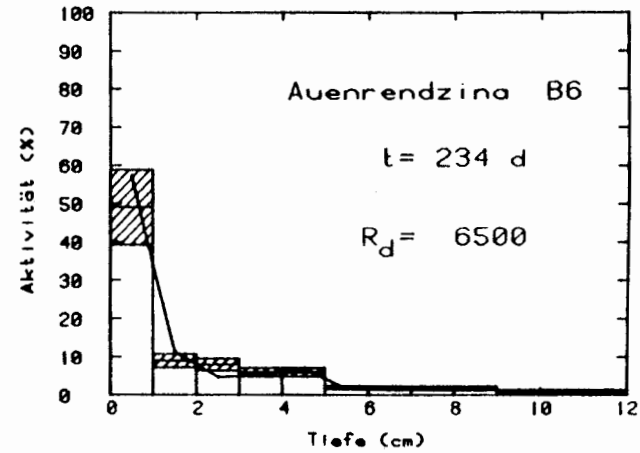
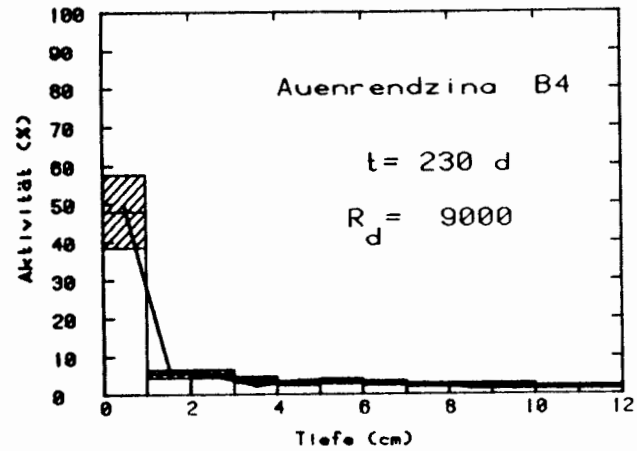


Abb. 5.2.2.4 Bestimmung des Retardationsfaktors R_d von Ru-106 durch Anpassung berechneter Tiefenverteilungen (durchgezogene Kurven) an die Meßwerte (schraffierter Fehlerbereich)
 t = Zeit in Tagen nach Nuklidaufgabe

Säule	im Boden (%)	insgesamt im Eluat (%)	Tage nach Nuklidabgabe
B2	97	3	460
B4	80	20	460
B6	84	16	459
E2	90	10	637
E5	44	56	453
E6	49	51	453

Tabelle 5.2.2.1 Verbleib der Aktivität von Tc-95m am Ende des Versuchszeitraums

im Sickerwasser aller Säulen (auch Sr-85 und Ru-106 wurden in den Eluaten einiger Säulen nachgewiesen, jedoch in sehr geringen Mengen).

Versucht man, das Verhalten von Tc-95m wie bei den anderen Radionukliden mit dem numerischen Modell zu beschreiben, so erhält man aus der Tiefenverteilung von Tc-95m andere und wesentlich größere R_d Werte als aus den Elutionskurven. Dies läßt darauf schließen, daß das als $^{95m}\text{TcO}_4^-$ aufgegebene Technetium sich im Boden in zwei Fraktionen spaltet, eine "schnelle" Fraktion, die kaum sorbiert wird, deshalb rasch im Eluat erscheint und mit hoher Wahrscheinlichkeit dem Anion $^{95m}\text{TcO}_4^-$ zuzuordnen ist, und eine "langsame" Fraktion, bei der es sich vermutlich um eine reduzierte, möglicherweise kationische Form handelt, die wie die anderen Kationen vom Boden sorbiert wird.

Aufgrund der Fraktionierung ist das bei den anderen Radionukliden erfolgreiche Modell der Ausbreitung bei Tc-95m streng genommen nicht anwendbar, weil das Modell in jeder Bodenschicht nur mit einem R_d -Wert rechnet (also einer chemischen Spezies). In guter Näherung sind die Elutionskurven mit dem Modell auswertbar, weil diese praktisch allein von der "schnellen" Fraktion herrühren (erst nach ca. 1 Jahr macht sich die "langsame" Fraktion im Eluat bemerkbar). Dagegen stammt die gemessene Tiefenverteilung von beiden Fraktionen, deren jeweiliger Summenanteil sich mit der Zeit ändert: Die als $^{95m}\text{TcO}_4^-$ wandernde Fraktion ist bis zum Austritt aus der Säule Quelle zur Bildung der "langsamen" Fraktion.

Um trotzdem vorläufige R_d -Werte auch für die "langsame" Fraktion vorlegen zu können, wurde von der sehr vereinfachenden Annahme ausgegangen, daß die Fraktionierung unmittelbar nach der Nuklidauflösung eintrat und die beiden Fraktionen sich dann unabhängig voneinander ausbreiteten. Dieses Vorgehen ist gerechtfertigt, wenn der Anteil der "schnellen" Fraktion relativ gering ist, also nach Tabelle 5.2.2.1 bei allen Säulen außer E5 und E6. Zwar enthält der in der Säule verbliebene Prozentsatz immer noch einen unbekanntem Anteil der "schnellen" Fraktion. Doch läßt sich aus dem Verlauf der Elutionskurven, deren Maxima bei allen Säulen am Ende des Versuchszeitraums längst überschritten waren, abschätzen, daß der weitaus größte Teil der "schnellen" Fraktion die Säule bereits passiert hatte, also nur noch ein geringer Teil in der Säule sein konnte.

Aufgrund dieser Überlegungen wurden die Elutionskurven im Hinblick auf die "schnelle" Fraktion und die Tiefenverteilungen der Säulen B2, B4, B6 und E2 im Hinblick auf die "langsame" Fraktion ausgewertet, wobei im letzteren Fall der in der Säule verbliebene Anteil als Aufgabe-Aktivität der "langsameren" Fraktion in das Modell eingesetzt wurde.

In Abb. 5.2.2.5 sind die Meßwerte von Tc-95m im Eluat und die zugehörigen Anpassungskurven bei den Säulen B4, B6 und E2 dargestellt. Die für die Anpassung benutzten R_d -Werte sind Mittelwerte über die ganze Säule, d.h. über alle Horizonte ([redacted] et al. 1977). Es ist jedoch anzunehmen, daß die "schnelle" Fraktion in allen Horizonten ähnliche R_d -Werte besitzt (siehe Sorptionsversuche 5.1). Aus den Anpassungen ergibt sich für die "schnelle" Fraktion bei der Auenrendzina $R_d = 1.4$ und bei der Parabraunerde $R_d = 3.0$ (bzw. $K_d = 0.1$ und $K_d = 0.5$). Bei den anderen Säulen wurden zum Teil R_d -Werte kleiner als 1 gefunden, d.h. Tc-95m war in diesen Säulen schneller als das früher aufgegebene Tritium! Als Erklärung ist zu vermuten, daß sich in den Bodenkernen feine Risse oder zusammenhängende Ketten von Grobporen gebildet hatten.

Die Anpassungskurven an die Tiefenverteilung von Tc-95m in den zur Auswertung herangezogenen Säulen sind in Abb. 5.2.2.6 wiedergegeben. Um die Anpassung zu verbessern, wurde bei einigen Säulen der A_p -Horizont nochmals unterteilt, jedoch unterscheiden sich die entsprechenden R_d -Werte nicht sehr voneinander. In beiden Böden kann man für den A_p -Horizont mit einem Wert von $R_d = 50 \pm 40$ rechnen. Über die R_d -Werte der tieferen Horizonte

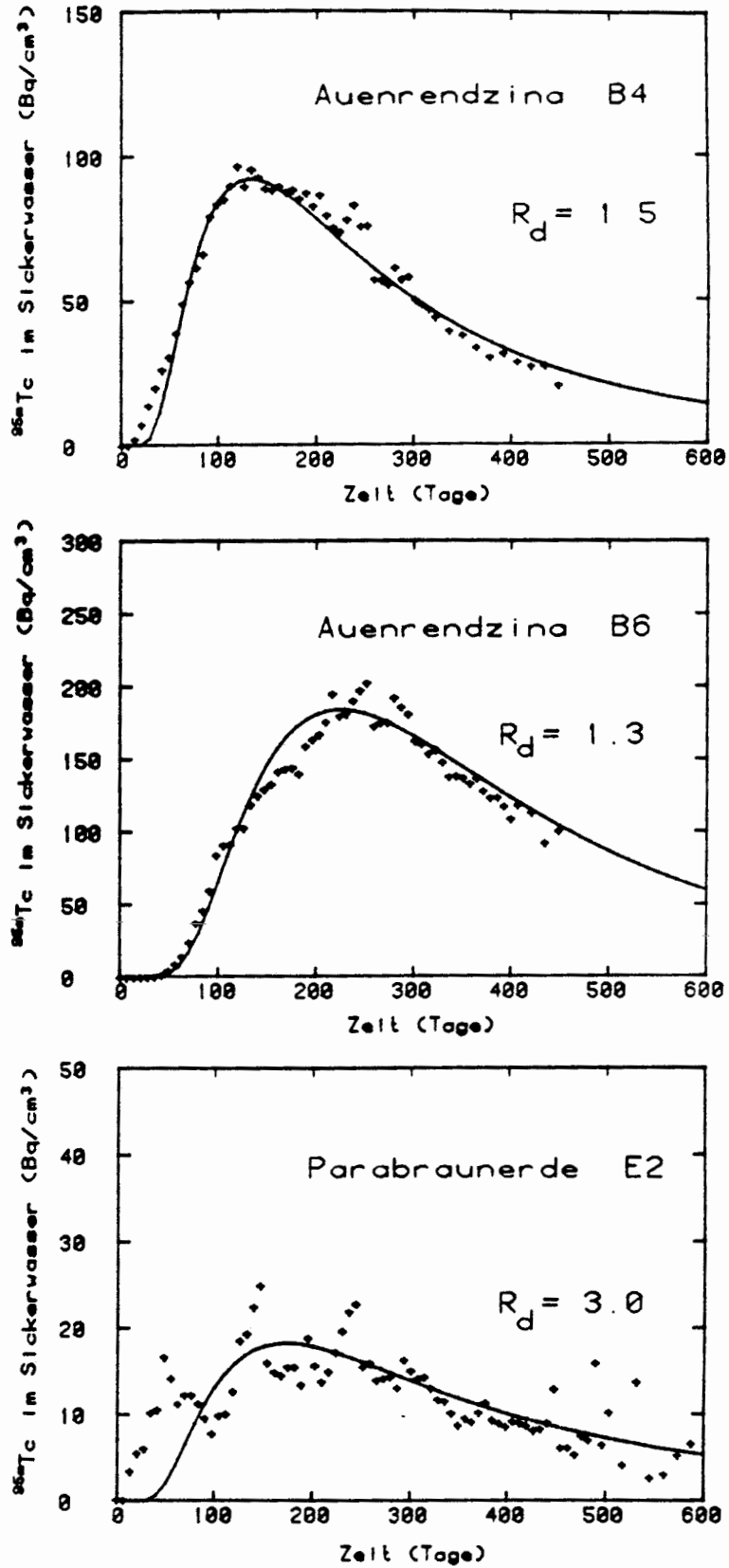


Abb. 5.2.2.5 Bestimmung des Retardationsfaktors R_d des "schnellen" Faktors von Tc-95m durch Anpassung berechneter Elutionskurven (durchgezogen) an die Meßwerte (+)

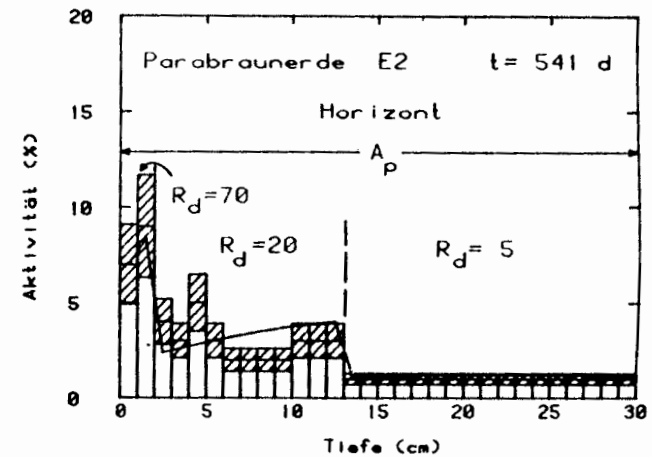
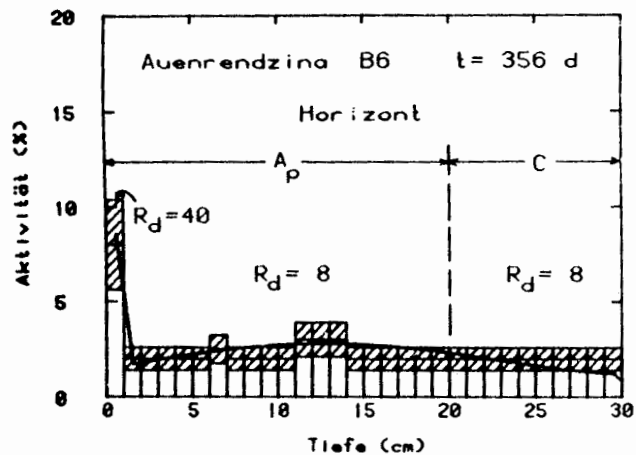
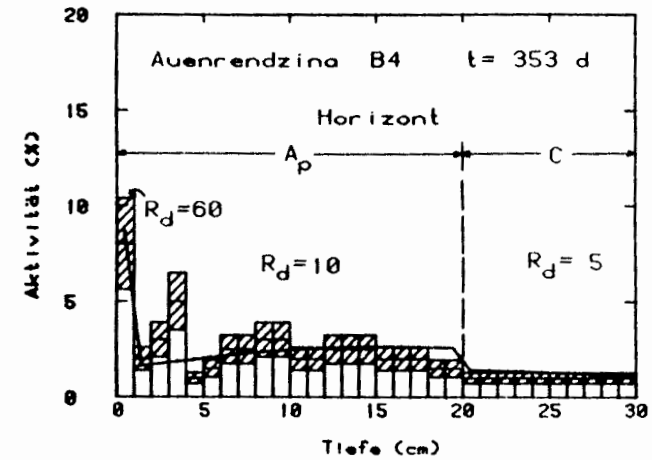
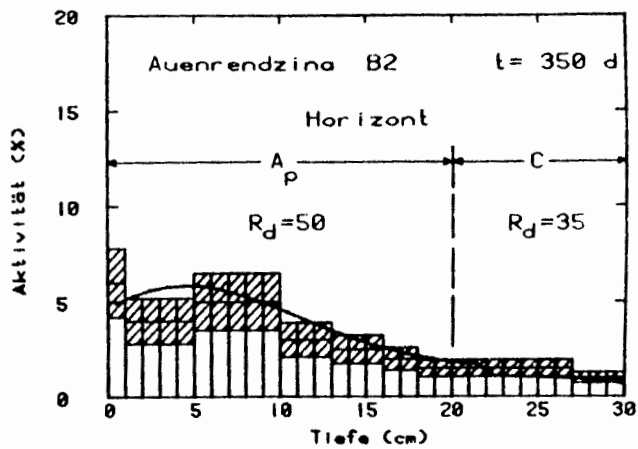


Abb. 5.2.2.6 Bestimmung des Retardationsfaktors R_d der "langsamen" Fraktion von Tc-95m durch Anpassung berechneter Tiefenverteilungen (durchgezogene Kurven) an die Meßwerte (schraffierter Fehlerbereich)

t = Zeit in Tagen nach Nuklidauflage

läßt sich zur Zeit nur feststellen, daß sie auf jeden Fall kleiner sind als die Werte für den A_p -Horizont, also von der Größenordnung 10 oder kleiner.

Abschließend sei nochmals betont, daß die angegebenen R_d -Werte für Tc-95m als vorläufig zu betrachten und darüber hinaus mit einem großen Fehler behaftet sind, weil sie mit wesentlichen Vereinfachungen gewonnen wurden. An der Verbesserung der Auswertmethoden für Tc-95m wird gegenwärtig gearbeitet.

Die aus Säulenversuchen für die A_p -Horizonte der Böden berechneten R_d -Werte sind in Tab. 5.2.2.3 zusammengestellt, wobei über die Säulen des jeweiligen Bodens gemittelt wurde. Die Fehler der R_d -Werte liegen im allgemeinen bei $\pm 60\%$, wobei das Minuszeichen mehr Gewicht hat als das Pluszeichen. Das heißt, die Werte können in Einzelfällen (z.B. Ce) auch stärker nach oben abweichen. Die Fehler der R_d -Werte der "langsamen" Fraktion von Tc-95m betragen ca. $\pm 80\%$. Neben der R_d -Werten sind auch die Verteilungskoeffizienten K_d und die Wanderungsgeschwindigkeiten v_N der Nuklide in Tab. 5.2.2.3 angegeben, die sich aus den R_d gemäß $v_N = v_a/R_d$ und $K_d = (R_d - 1)/(\rho_L/\theta)$ berechnen. Aus der Tabelle ist zu ersehen, daß die R_d -Werte außer für Tc sehr groß sind. Die R_d -Werte der Parabraunerde sind stets größer oder zumindest gleich groß wie die der Auenrendzina, wobei vor allem die Differenz beim Ce-139 auffällt. Die Mobilität der Radionuklide ist in beiden Böden verschieden:

Mobilität in der Auenrendzina: Tc \gg Sr > Ce > Cs > Ru

Mobilität in der Parabraunerde: Tc \gg Sr \gg Ru > Cs > Ce .

Radionuklid	Auenrendzina			Parabraunerde		
	R_d	v_N (10^{-2} m/a)	K_d (cm^3/g)	R_d	v_N (10^{-2} m/a)	K_d (cm^3/g)
Cs-137	4500±2500	0.02	1000	17000±10000	0.01	4000
Sr-85	900± 500	0.13	200	1300± 800	0.13	300
Ce-139	1700±1000	0.07	400	> 20000	<0.01	>5000
Ru-106	8000±5000	0.01	1800	13000± 8000	0.01	3000
Tc-95m l.F.*	50±40	2.4	10	50±40	3.7	10
Tc-95m s.F.*	1.4±0.4	81	0.1	3.0±1.0	56	0.5

* l.F. = "langsame" Fraktion

s.F. = "schnelle" Fraktion

Tabelle 5.2.2.3 Ergebnisse der Säulenversuche für die A_p -Horizonte der Auenrendzina und der Parabraunerde

R_d = Retardationsfaktor der Radionuklide

K_d = Verteilungskoeffizient der Radionuklide

v_N = Wanderungsgeschwindigkeit der Radionuklide

Fehler: ± 60%, außer bei Tc-95m (l.F.): ± 80%

(s.F.): ± 30%

6. Vergleich der K_d -Werte aus Sorptions- und Säulenversuchen

Wie bereits eingangs erwähnt, erhält man mit Hilfe von Sorptions- (Batch-) Verfahren K_d -Werte, die nur unter ganz bestimmten Voraussetzungen den dynamischen Vorgang der Radionuklidwanderung in einer Bodensäule beschreiben können. Aus diesem Grund sollen, soweit möglich, K_d -Werte nach dem Batch-Verfahren durch entsprechende Messungen an Bodensäulen überprüft werden. Dazu werden im folgenden die K_d -Werte der Radionuklide in den A_p -Horizonten der beiden Ackerböden verwendet. Für die tiefer gelegenen Horizonte konnten wegen der langsamen Ausbreitung der Nuklide in den Bodensäulen innerhalb des Untersuchungszeitraums vom ca. 2 Jahren noch keine R_d - bzw. K_d -Werte erhalten werden. In Abb. 6.1 sind zum Vergleich die K_d -Werte nach dem Batch-Verfahren und nach dem Säulenverfahren für Cs-137, Sr-85, Ce-139, Ru-106 und Tc-95m gegenübergestellt. Dabei zeigt sich, daß für Cs-137 und Ce-139 die K_d -Werte nach dem Batch-Verfahren für beide Böden über den entsprechenden Werten nach den Säulenverfahren liegen, während für Sr-85, Ru-106 und Tc-95m das entgegengesetzte Verhalten beobachtet wird. Dabei liegen diese Unterschiede weit außerhalb des experimentellen Fehlerbereichs der beiden Methoden (siehe 4.4). Es gibt mehrere Gründe, warum K_d -Werte nach dem Batch-Verfahren und dem Säulenverfahren nicht übereinstimmen müssen ([REDACTED] et al. 1982). Welche Gründe bei den hier vorliegenden Böden im einzelnen für die beobachteten Differenzen verantwortlich sind, kann nur nach Kenntnis des Sorptionsmechanismus für die einzelnen Nuklide entschieden werden. Dies war jedoch nicht Gegenstand der vorliegenden Untersuchung.

Bei den beiden Ackerböden sind für die meisten Nuklide die Unterschiede zwischen den K_d -Werten nach dem Batch- und Säulenverfahren meist etwa eine Größenordnung. Die stärksten Abweichungen wurden für Tc-95m gefunden, das im Säulenversuch wesentlich langsamer wandert, als man es von seinem nach dem Batch-Verfahren ermittelten K_d -Wert erwarten würde. Sehr wahrscheinlich ist der Grund hierfür, daß unter den teilweise anaeroben Verhältnissen in der Bodensäule ein Teil der aufgegebenen negativ geladenen Pertechnetationen zu einer positiv geladenen Tc-Spezies reduziert wird. Diese wird vom Boden wie alle Kationen stark sorbiert und damit verzögert. Dafür spricht auch, daß bei den Säulenexperimenten ein geringer Bruchteil der aufgegebenen Pertechnetat-Ionen, die offensichtlich nicht reduziert wurden, ohne

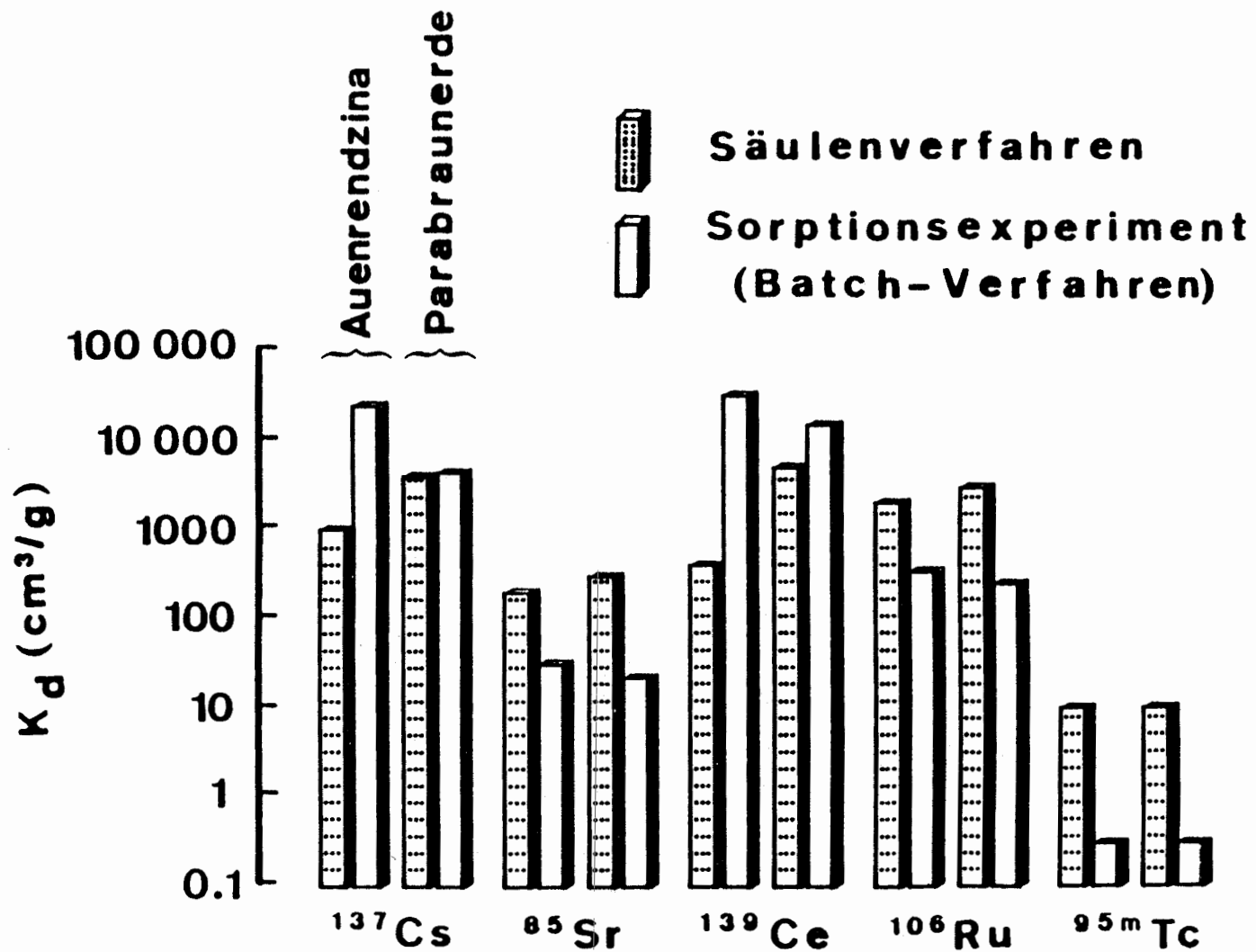


Abb. 6.1 Verteilungskoeffizienten verschiedener Radionuklide in der obersten Bodenschicht (A_p -Horizont) der Auenrendzina und der Parabraunerde nach dem Säulenverfahren sowie zum Vergleich nach dem Batch-Verfahren

Verzögerung gegenüber dem Sickerwasser im Säuleneluat erscheinen (siehe 5.2.2). Falls daher für Tc keine Säulenversuche unter realistischen Bedingungen durchgeführt werden, sollten für dieses Element zumindest auch Batch-Versuche unter teilweise anaeroben Bedingungen erfolgen. Ähnlich komplex ist auch das Verhalten von Jod, dessen chemische Form durch mikrobielle Umsetzungen im Boden verändert wird ([REDACTED] 1982), was durch Batch-Versuche über einen längeren Zeitraum wahrscheinlich nur ungenügend simuliert werden kann. Leider steht für Säulenversuche kein genügend langlebiges Jodisotop mit harter Gammastrahlung zur Verfügung, um dies mit unserem Versuchsaufbau zu überprüfen.

7. Vergleich der K_d -Werte für verschiedene Böden

Die an den beiden hier vorliegenden Ackerböden ermittelten K_d -Werte sollen zum Vergleich noch früher von uns an anderen typischen Böden Deutschlands gemessenen Werten gegenübergestellt werden. Da damals (Projekt PSE I; [REDACTED] et al. 1981) nur Verteilungskoeffizienten von Cs, Sr, Ce und J bestimmt wurden, können nur diese Radionuklide für den Vergleich verwendet werden. Bei diesen Böden handelte es sich um eine Braunerde aus Brünkendorf und einen Ranker aus Trebel, die beide als Weide genutzt wurden, sowie um einen Podsol, der sowohl von einem Acker als auch von einer Weide entnommen wurde. Eine eingehende Charakterisierung dieser Böden ist in [REDACTED] et al. (1981) zu finden. In Abb. 7.1 sind die K_d -Werte nach dem Batch-Verfahren für die obigen Radionuklide in der obersten Bodenschicht (A_h -Horizont für die Weideböden, A_p -Horizont für die Ackerböden) für die bisher untersuchten Böden aufgetragen. Dabei sieht man, daß mit Ausnahme von Cs und Ce in der Parabraunerde und der Auenrendzina (beide Ackerböden) die Verteilungskoeffizienten eines Radionuklids für die verschiedenen Böden etwa innerhalb einer Größenordnung übereinstimmen. Die verhältnismäßig hohen K_d -Werte für Cs und Ce in der Parabraunerde und der Auenrendzina sind wahrscheinlich auf die relativ hohen pH-Werte (pH 7) dieser beiden Böden zurückzuführen (siehe Tab. 3.3.3.1), die deutlich über denjenigen der anderen liegen (pH 4 - 5). Obwohl man erwarten sollte, daß der hohe pH-Wert in diesen Böden auch zu hohen K_d -Werten für die Sorption von Sr führen sollte, wird dies nicht beobachtet: Die Verteilungskoeffizienten für dieses Radionuklid in der Parabraunerde und der Auenrendzina unterscheiden sich nicht wesentlich von den entsprechenden Werten in den anderen Böden. Der Grund dafür dürfte in der verhältnismäßig hohen Kalzium-Konzentration in der Bodenlösung der Parabraunerde und der Auenrendzina liegen, die mit 0.01 N erheblich höher ist als bei den anderen Böden (ca. 0.001 N). Dies bedingt, wie oben gezeigt (Abb. 5.1.3.3 bis 5.1.3.4), eine starke Erniedrigung der K_d -Werte für Sr, aber kaum für Cs und Ce.

Zu qualitativ ähnlichen Aussagen wie in der obersten Bodenschicht führt auch ein Vergleich der K_d -Werte für die obigen Radionuklide in 1 m Tiefe der untersuchten Böden, siehe Abb. 7.2. Auch hier sind die K_d -Werte für

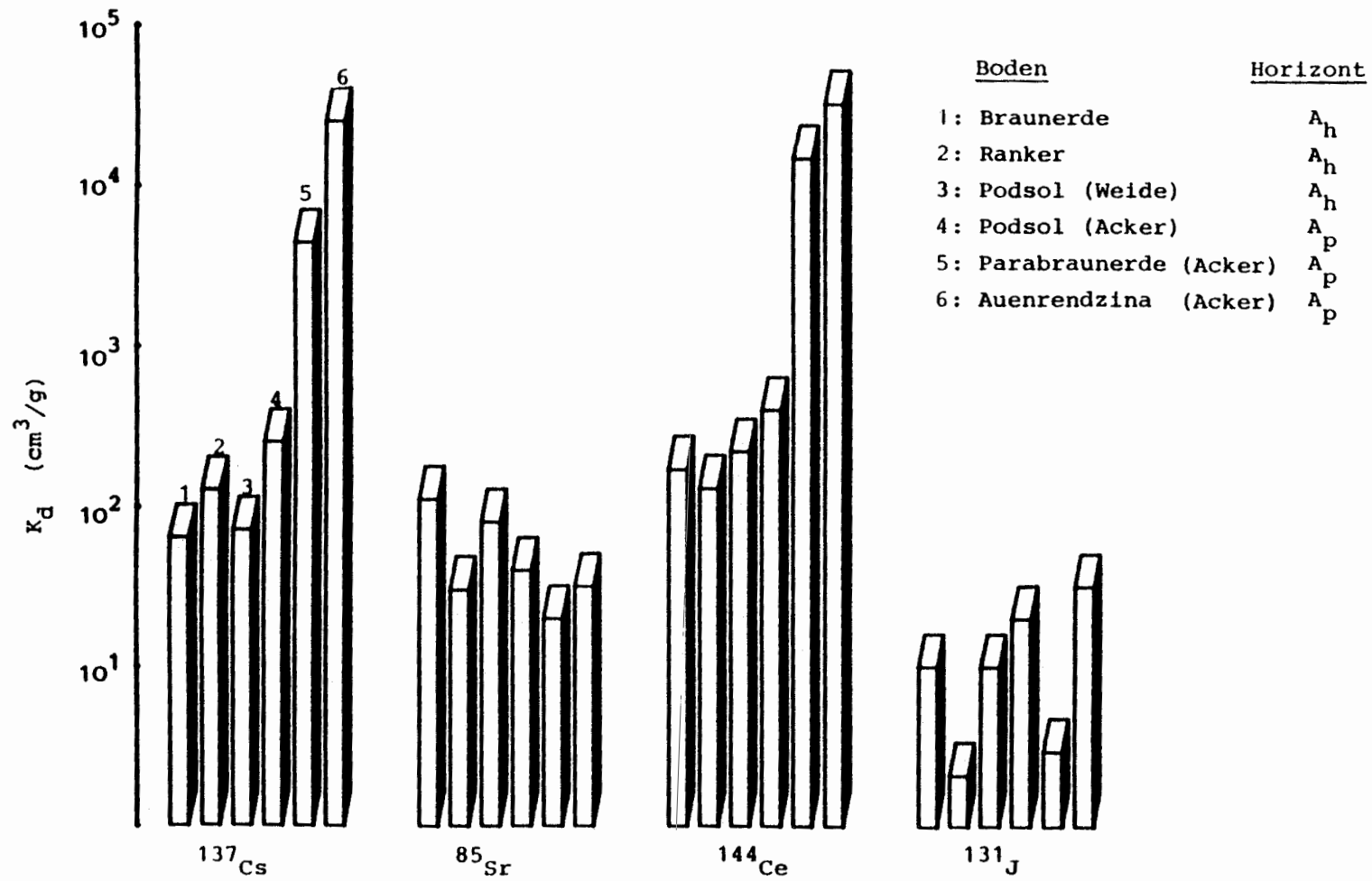


Abb. 7.1 Verteilungskoeffizienten einiger Radionuklide in der obersten Bodenschicht verschiedener Böden (A_p-Horizont bei Ackerböden, A_h-Horizont bei Weide) nach dem Batch-Verfahren

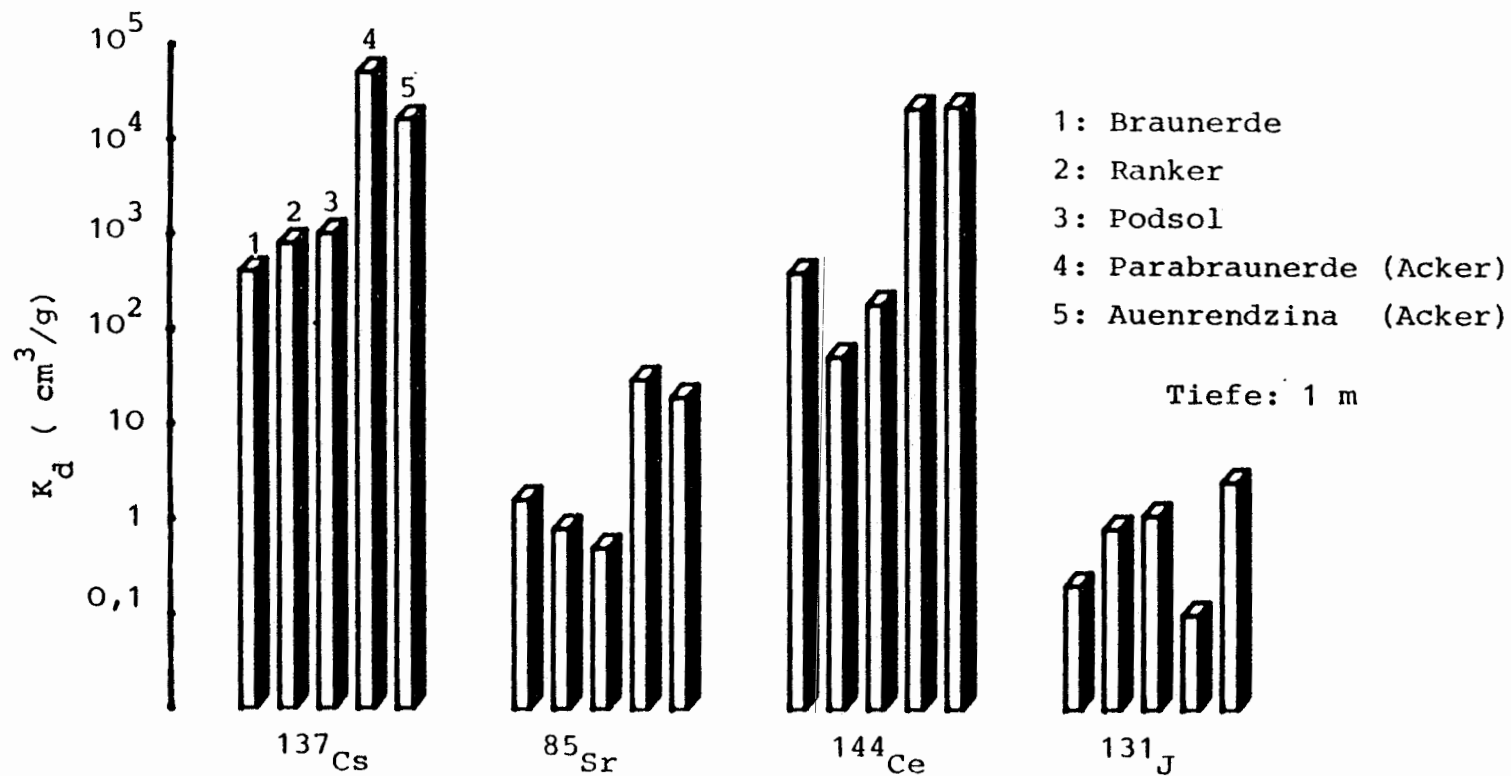


Abb. 7.2 Verteilungskoeffizienten einiger Radionuklide in 1 m Tiefe verschiedener Böden nach dem Batch-Verfahren

Cs und Ce in der Parabraunerde und der Auenrendzina erheblich höher als in den anderen Böden, wobei diese Erhöhung nun jedoch auch für Sr beobachtet wird. Vermutlich ist dies wieder eine Folge der Kalziumkonzentration in der Bodenlösung, die in dieser Tiefe nicht mehr so hoch ist, wie in dem intensiv mineralisch gedüngten Oberboden. Dadurch führt der relativ hohe pH-Wert der Bodenlösung bei der Auenrendzina und der Parabraunerde auch in dieser Tiefe zu verhältnismäßig hohen K_d -Werten für Strontium.

Für beide Tiefen läßt sich aus Abb. 7.1 und 7.2 entnehmen, daß unabhängig von den untersuchten Böden die höchsten K_d -Werte für Cs und Ce beobachtet werden, während diejenigen von Sr und J niedriger sind. Die Verteilungskoeffizienten für J sind jedoch nur mit gewissen Einschränkungen zu sehen, da sie durch Säulenversuche mangels eines geeigneten Radioisotops nicht überprüft werden konnten.

8. Schlußfolgerungen

Verwendet man die unter weitgehend natürlichen Bedingungen durchgeführten Säulenversuche zur Messung der Wanderungsgeschwindigkeit von Radionukliden, so erhält man für die beiden hier untersuchten Ackerböden (Parabraunerde und Auenrendzina) folgende Mobilitätsreihe:

abnehmende Mobilität im Boden ----->
Tc > Sr > Ru > Ce ≈ Cs
zunehmender Verteilungskoeffizient ----->

Diese Reihe ist weitgehend ähnlich mit der früher von uns (PSE I, [REDACTED] et al. 1982) an anderen Böden (Ranker, Podsol, Braunerde) gefundenen Sequenz, wobei die absoluten Größen der K_d -Werte selbstverständlich verschieden sind. Nicht aufgenommen in die obige Mobilitätsreihe wurde Jod, dessen nach dem Batch-Verfahren ermittelte K_d -Werte mangels eines geeigneten langlebigen Radioisotops mit harter Gammastrahlung nicht durch Säulenversuche überprüft werden können.

Ein Vergleich von K_d -Werten, die sowohl nach dem Säulen- als auch nach dem Batch-Verfahren bestimmt wurden, zeigt, daß bei den beiden Ackerböden Unterschiede von etwa einer Größenordnung auftreten, wobei sowohl positive als auch negative Abweichungen auftreten können. Am größten sind die Abweichungen bei Technetium, was auf Reduktionsprozesse in den Bodensäulen schließen läßt, die sich durch das Batch-Verfahren nur ungenügend simulieren lassen.

Mit dem gegenwärtig von uns angewandten Batch-Verfahren, das gegenüber dem früher eingesetzten erheblich verbessert wurde (Herstellung einer separaten Bodengleichgewichtslösung für jeden Horizont vor dem eigentlichen Batch-Experiment) lassen sich Einflüsse verschiedener Parameter (z.B. pH, E_h , Einfluß von Düngemitteln) auf die K_d -Werte an großen Probenzahlen untersuchen. Realistische K_d -Werte, wie sie aber unter weitgehend natürlichen Bedingungen an Säulenversuchen erhalten werden, lassen sich mit dem bisherigen Batch-Verfahren nur bis etwa auf eine Größenordnung genau erhalten, wobei diese Unterschiede bei redoxsensiblen Nukliden sogar noch größer sein können.

Es ist denkbar, daß in Zukunft die Batch-Verfahren soweit verbessert werden können, daß sie tatsächlich die in einer Bodensäule auftretenden Verhältnisse beschreiben können. Dies ist jedoch erst möglich, wenn die zahlreichen Wechselwirkungen der Radionuklide mit den verschiedenen anorganischen und organischen Bestandteilen des Bodens sowie den Mikroorganismen besser verstanden sind. Da diese vom Nuklid und dessen chemischer Form abhängen, wird es wahrscheinlich nicht möglich sein, ein einheitliches Batch-Verfahren zu entwickeln, sondern es werden, zumindest für bestimmte Nuklidgruppen und eventuell auch verschiedene Bodentypen, maßgeschneiderte Verfahren zu erarbeiten sein.

9. Literatur

AMES, L.L., and D. RAI: Radionuclide Interactions with Soil and Rock Media, Vol. 1, EPA 520/6-78-007-A, U.S. Environmental Protection Agency (1978).

ALBERTSEN, M. and G. MATTHESS; Verhalten relevanter Radioisotope in drei typischen Sandböden des Norddeutschen Flachlandes, Meyniana 3, 7 (1980)

BACHHUBER, H., K. BUNZL, F. DIETL, R. KRETNER, W. SCHIMMACK und W. SCHULTZ: Ausbreitung von Radionuklidlen im oberflächennahen Boden, GSF-Bericht S-788, 1981

BACHHUBER, H., K. BUNZL, W. SCHIMMACK, I. GANS: The Migration of Cs-137 and Sr-90 in Multilayered Soils: Results from Batch, Column, and Fallout Investigations, Nuclear Technology 59, 291 - 301 (1982)

BEHRENS, H., D. KLOTZ, H. LANG and H. MOSER: Comparison of Methods for the Determination of Retention Factors of Radionuclides in Mineral Soils, Proc. Int. Symp. on Environmental Migration of Long-Lived Radionuclides, IAEA, Vienna, 182 - 187 (1982)

BEHRENS, H.: New Insights into the Chemical Behaviour of Radioiodine in Aquativ Environments, Proc. Int. Symp. on Environmental Migration of Long-Lived Radionuclides, IAEA, Vienna, 27 - 41 (1982)

DER HESSISCHE MINISTER FÜR WIRTSCHAFT UND VERKEHR (Hrsg.): Modellstudie Radioökologie Biblis, Wiesbaden (1981)

FRISSEL M.J., and P. REINIGER: Simulation of Accumulation and Leaching in Soils, Centre of Agricultural Publishing and Documentation, Wageningen (1974)

FRISSEL, M.J., and R. PENNDERS: Models for the Migration of Sr-90, Cs-137, Pu-239+240 and Am-241 in the Top Layer of Soils, Proc. Int. Symp. on Environmental Migration of Long-Lived Radionuclides, IAEA, Vienna, 689 - 694 (1982)

FÜHR F.: Die Aufnahme von Radionukliden aus dem Boden, Fachtagung Radio-
ökologie, Deutsches Atomforum e.V., Bonn, 2. - 3. Oktober 1979

MATTHIES, M. K. EISFELD, H. MÜLLER, H.G. PARETZKE, G. PRÖHL, E. WIRTH:
Simulation des Transfers von Radionukliden in landwirtschaftlichen
Nahrungsketten, GSF-Bericht S.882 (1982)

NERETNIEKS, I.: Prediction of Radionuclide Migration in the Geosphere: Is
the Porous Flow Model Adequate, Proc. Int. Symp. on Environmental
Migration of Long-Lived Radionuclides, IAEA, Vienna, 635 - 658 (1982)

RANCON, D.: La Retention des Radionuclides par la Roches dans le Cas de
Transferts en Milieux Compacts Fissures, Proc. Int. Symp. on Environ-
mental Migration of Long-Lived Radionuclides, IAEA, Vienna, 158 -166
(1982)

RELYEA, J.F., R.J. SERNE, and R. RAI: Methods for Determining Radionuclide
Retardation Factors: Status Report, PNL-3349, Pacific Northwest
Laboratory (1980)

ROUTSON, R.C., G. JANSEN, and A.V. ROBINSON: ^{241}Am , ^{237}Np and ^{99}Tc Sorption
on Two United States Subsoils from Differing Weathering Intensity Areas,
Health Phys. 33, 311 (1977)

SELIM H.M., J.M. DAVIDSON, and P.S.C. RAO: Transport of Reactive Solutes
Through Multilayered Soils, Soil Sci. Soc. Am. J. 41, 3 (1977)

Dank

Das vorliegende Forschungsvorhaben wurde im Rahmen des Projekts "Sicherheitsstudien Entsorgung (PSE II)" dankenswerterweise vom Bundesminister für Forschung und Technologie durch Personal- und Sachmittel gefördert.

Die Autoren möchten sich ebenfalls bedanken bei den Herrn [REDACTED] und [REDACTED] (Institut für Radioagronomie der KFA Jülich) sowie [REDACTED] und [REDACTED] (Institut für Radiohydrometrie der GSF) für die stets gute Zusammenarbeit; [REDACTED] und [REDACTED] (Rheinisch-Westfälisches Elektrizitätswerk, Biblis) für die Hilfe bei der Probenahme; [REDACTED] [REDACTED] für anregende Diskussionen sowie [REDACTED] für technische Hilfe.